

日 本 国 特 許 庁  
PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT



別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application:

2000年11月24日

出 願 番 号

Application Number:

特願2000-357098

出 願 人

Applicant (s):

マツダ株式会社

2001年 3月30日

特 許 庁 長 官  
Commissioner,  
Patent Office

及 川 耕 造

出証番号 出証特2001-3024401

【書類名】 特許願

【整理番号】 M20000742

【提出日】 平成12年11月24日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 B29B 9/14

【発明者】

    【住所又は居所】 広島県安芸郡府中町新地 3 番 1 号 マツダ株式会社内

    【氏名】 枡岡 孝宏

【発明者】

    【住所又は居所】 広島県安芸郡府中町新地 3 番 1 号 マツダ株式会社内

    【氏名】 藤 和久

【発明者】

    【住所又は居所】 広島県安芸郡府中町新地 3 番 1 号 マツダ株式会社内

    【氏名】 森脇 健二

【特許出願人】

    【識別番号】 000003137

    【氏名又は名称】 マツダ株式会社

【代理人】

    【識別番号】 100077931

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 前田 弘

【選任した代理人】

    【識別番号】 100094134

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 小山 廣毅

【選任した代理人】

    【識別番号】 100110939

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 竹内 宏

【選任した代理人】

【識別番号】 100110940

【弁理士】

【氏名又は名称】 嶋田 高久

【選任した代理人】

【識別番号】 100113262

【弁理士】

【氏名又は名称】 竹内 祐二

【選任した代理人】

【識別番号】 100115059

【弁理士】

【氏名又は名称】 今江 克実

【選任した代理人】

【識別番号】 100115510

【弁理士】

【氏名又は名称】 手島 勝

【選任した代理人】

【識別番号】 100115691

【弁理士】

【氏名又は名称】 藤田 篤史

【先の出願に基づく優先権主張】

【出願番号】 特願2000- 88121

【出願日】 平成12年 3月28日

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 014409

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0003928

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 成形用ガラス長繊維強化樹脂材料、該樹脂材料を射出成形してなる射出成形品及び該樹脂材料を用いた成形方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 マトリックスポリマーと、ガラス長繊維と、該マトリックスポリマーと該ガラス長繊維との間に親和性を付与する親和性付与成分とを備え、少なくとも該マトリックスポリマーと該ガラス長繊維とが複合体を形成してなる成形用ガラス長繊維強化樹脂材料において、

上記マトリックスポリマーは、アイソタクチックペンタッド分率が 95% 以上であるポリプロピレン成分を有し、且つメルトフローレート（JIS K7210 温度：230℃ 荷重：21.18N）が 100～300g/10min であり、

上記ガラス長繊維は、全体質量に対して質量百分率で 30～50% 含まれていることを特徴とする成形用ガラス長繊維強化樹脂材料。

【請求項 2】 上記複合体の形態は、長さ 10～12mm の棒状のペレットであり、ガラス長繊維がその長手方向に配向していることを特徴とする請求項 1 に記載の成形用ガラス長繊維強化樹脂材料。

【請求項 3】 上記親和性付与成分は、上記ガラス長繊維の表面処理に用いられているカップリング剤と化学結合する官能基を有する酸変性ポリプロピレンであることを特徴とする請求項 1 又は 2 に記載の成形用ガラス長繊維強化樹脂材料。

【請求項 4】 上記酸変性ポリプロピレンは、無水マレイン酸変性ポリプロピレン及びアクリル酸変性ポリプロピレンのうち少なくとも一方を構成成分として有することを特徴とする請求項 3 に記載の成形用ガラス長繊維強化樹脂材料。

【請求項 5】 上記マトリックスポリマーは、ホモポリプロピレンであることを特徴とする請求項 1 乃至 4 のいずれか一に記載の成形用ガラス長繊維強化樹脂材料。

【請求項 6】 ポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が 95% 以上であるエチレン・プロピレンブロック共重合体が混合されていることを

特徴とする請求項 5 に記載の成形用ガラス長繊維強化樹脂材料。

【請求項 7】 射出成形に用いられることを特徴とする請求項 1 乃至 6 のいずれかに記載の成形用ガラス長繊維強化樹脂材料。

【請求項 8】 ポリプロピレン成分を有するマトリックスポリマーと、該マトリックスポリマーに全体質量に対して質量百分率で 3 0 ～ 5 0 % 含まれるガラス長繊維とを備えた成形用ガラス長繊維強化樹脂材料を射出成形してなる射出成形品であって、

上記含有するガラス長繊維の質量平均繊維長が 4 m m 以上であり、且つ曲げ弾性率が 5 G P a 以上、アイゾット衝撃値が  $2 5 \text{ K J} / \text{m}^2$  以上であることを特徴とする射出成形品。

【請求項 9】 含有するガラス長繊維の重量平均繊維長が 4 m m 以上であり、且つ曲げ弾性率が 5 G P a 以上、アイゾット衝撃値が  $2 5 \text{ K J} / \text{m}^2$  以上であることを特徴とする請求項 1 乃至 7 のいずれかに記載の成形用ガラス長繊維強化樹脂材料を射出成形してなる射出成形品。

【請求項 1 0】 車両のシュラウドモジュール、ドアモジュール、リフトゲートモジュール、バンパーモジュール及びステップ部材のいずれかであることを特徴とする請求項 8 又は 9 に記載の射出成形品。

【請求項 1 1】 請求項 1 乃至 7 のいずれかに記載の成形用ガラス長繊維強化樹脂材料における樹脂成分を加熱溶融させ、該溶融物をせん断流動させながら混練した後、所定形状に成形することを特徴とするガラス長繊維強化樹脂成形品の成形方法。

【請求項 1 2】 樹脂加熱手段、混練用スクリュウ及び成形用金型を備えた射出成形機を用いて射出成形品を成形する方法であって、

アイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % 以上であり且つメルトフローレート ( J I S K 7 2 1 0 温度:  $2 3 0 ^\circ \text{C}$  荷重:  $2 1. 1 8 \text{ N}$  ) が  $1 0 0 \sim 3 0 0 \text{ g} / 1 0 \text{ m i n}$  であるホモポリプロピレンとガラス長繊維とが複合して形成され該ガラス長繊維が長手方向に配向した長さ  $1 0 \sim 1 2 \text{ m m}$  の棒状ペレットを有する成形用ガラス長繊維強化樹脂材料を、上記射出成形機に投入するステップと

上記射出成形機に投入した樹脂材料を、上記樹脂加熱手段で加熱することによりその樹脂成分を溶融させると共に上記混練用スクリューを回転速度 2 0 ~ 4 0 r p m で回転させることにより混練するステップと、

上記加熱及び混練した樹脂材料を、上記成形用金型に充填時間 2 . 5 ~ 7 . 0 秒で射出することにより、ガラス長繊維が全体質量に対して質量百分率で 3 0 ~ 5 0 % 含まれると共にその質量平均繊維長が 4 m m 以上であり、且つ曲げ弾性率が 5 G P a 以上、アイゾット衝撃値が  $2 5 \text{ K J } / \text{ m }^2$  以上である射出成形品を成形するステップと、

を備えたことを特徴とする射出成形品の成形方法。

【請求項 1 3】 樹脂加熱手段、混練用スクリュー及び成形用金型を備えた射出成形機を用いて車両のシュラウドモジュールをなす射出成形品を成形する方法であって、

アイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % 以上であり且つメルトフローレート ( J I S K 7 2 1 0 温度: 2 3 0 ° C 荷重: 2 1 . 1 8 N ) が 1 0 0 ~ 3 0 0 g / 1 0 m i n であるホモポリプロピレンとガラス長繊維とが複合して形成され該ガラス長繊維が長手方向に配向した長さ 1 0 ~ 1 2 m m の棒状ペレットを有する成形用ガラス長繊維強化樹脂材料を、上記射出成形機に投入するステップと、

上記射出成形機に投入した樹脂材料を、上記樹脂加熱手段で加熱することによりその樹脂成分を溶融させると共に上記混練用スクリューを回転させることにより混練するステップと、

上記加熱及び混練した樹脂材料を、上記成形用金型に射出することにより、ガラス長繊維が全体質量に対して質量百分率で 3 0 ~ 5 0 % 含まれると共にその質量平均繊維長が 4 m m 以上であり、且つ曲げ弾性率が 5 G P a 以上、アイゾット衝撃値が  $2 5 \text{ K J } / \text{ m }^2$  以上である車両のシュラウドモジュールを成形するステップと、

を備えたことを特徴とする車両のシュラウドモジュールをなす射出成形品の成形方法。

【請求項 1 4】 上記射出成形品は、車両のシュラウドモジュールであるこ

とを特徴とする請求項 1 2 に記載の射出成形品の成形方法。

【請求項 1 5】 上記成形用ガラス長繊維強化樹脂材料は、ポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % 以上であるエチレン・プロピレンブロック共重合体が混合されていることを特徴とする請求項 1 2 乃至 1 4 のいずれか一に記載の射出成形品の成形方法。

【発明の詳細な説明】

【 0 0 0 1 】

【発明の属する技術分野】

本発明は、射出成形等に用いられる成形用ガラス長繊維強化樹脂材料、その樹脂材料を射出成形してなる射出成形品及び該樹脂材料を用いた成形方法に関する。

【 0 0 0 2 】

【従来の技術】

自動車用部品等の各種工業用品の素材として、機械的特性、成形加工性等が極めて優れていることから、長さ 1 0 m m 程度のガラス長繊維により強化された樹脂材料が広く使用されている。

【 0 0 0 3 】

そして、かかるガラス長繊維強化樹脂材料として、特開平 7 - 2 3 2 3 2 4 号公報には、メルトフローレート（以後「MFR」と称する）が 7 0 ~ 3 0 0 g / 1 0 m i n である変性ポリプロピレン樹脂を溶融させ、それをガラス繊維束に含浸した後、長さ 2 ~ 5 0 m m に切断して得られるペレットをマスターバッチとし、これをポリプロピレン樹脂で希釈したものが記載されており、かかる構成により、引き抜き法で製造されるマスターバッチ中のガラス長繊維の分散性向上等を図り、マスターバッチをポリプロピレン樹脂で希釈することによる成形品の強度低下を防止することが開示されている。

【 0 0 0 4 】

また、特公平 3 - 2 5 3 4 0 号公報には、低分子量の熱可塑性ポリマーと体積百分率で 3 0 % 以上の強化用ガラスフィラメントとを含むガラス長繊維強化ペレットと、このペレットを構成する熱可塑性ポリマーよりも高分子量の熱可塑性ポ



リマーとをブレンドしたものについて記載されており、かかる構成により、ガラス繊維の樹脂による濡れ性の向上を図り、成形品の曲げ弾性率を向上させることが開示されている。

## 【 0 0 0 5 】

さらに、特開平 1 1 - 1 5 2 0 6 2 号公報には、熱可塑性樹脂（ポリプロピレン、エチレン・プロピレンブロック共重合体等）をマトリックスとし、互いに平行に配列されたガラス繊維を 2 0 ～ 8 0 質量％含有する全長 2 ～ 1 0 0 m m のガラス繊維含有熱可塑性樹脂ペレットを原材料に含み、その原材料を射出成形してなる自動車用フロントエンドであって、ガラス繊維の含有率が 1 5 ～ 5 0 質量％であり且つその重量平均繊維長が 1 ～ 2 0 m m であるものが開示されており、かかる構成により、優れた振動疲労特性及び耐衝撃性が確保されるとともに、反り変形が抑制される、との内容が記載されている。

## 【 0 0 0 6 】

そして、第 2 7 2 1 7 0 2 号特許公報には、重合品プロピレン重合体（プロピレンホモポリマー等）と補強材（ガラス繊維等）とをブレンドした組成物であって、重合品プロピレン重合体は約 5 5 ～ 4 3 0 g / 1 0 分の M F R を有し、補強材は重合品プロピレン重合体材料及び補強材の全重量を基にして約 2 0 ～ 6 5 ％含まれるものが開示されており、かかる構成により、低 M F R の重合品重合体で作られた繊維強化組成物より良好な流れ特性を有し、同時に、成形品の強度およびこわさに関して、それらの特性の低下が抑制される、との内容が記載されている。

## 【 0 0 0 7 】

特開平 6 - 3 4 0 7 8 4 号公報には、実質的に全てが少なくとも 3 m m 以上の長さを有し、直径が 2 0  $\mu$  m 以下の強化用ガラス繊維 2 0 ～ 8 0 質量部と、少なくとも一部が不飽和カルボン酸又はその誘導体で変性され、且つ重合体全体の M F R が 5 0 g / 1 0 分以上の結晶性プロピレン系重合体（プロピレン単独重合体、エチレン・プロピレン共重合体等） 8 0 ～ 2 0 質量部とからなり、強化用ガラス繊維が重合体成分中に互いにほぼ平行な状態で配列して存在しているガラス繊維結束構造物を 3 ～ 9 7 質量％と、M F R が 5 0 g / 1 0 分以上の結晶性プロピ

レン系重合体（プロピレン単独重合体、エチレン・プロピレン共重合体等）を 97～3%と、から構成されたプロピレン系耐熱樹脂成形材料が開示されており、かかる構成によれば、射出成形等により得られる成形品は、耐熱性、成形性、耐成形反りが優れ、且つ軽量であるために、例えば、軽量で高度な耐熱性、成形寸法安定性を求められる自動車部品に適用することができる、との内容が記載されている。また、エチレン系エラストマー（エチレン・プロピレン二元共重合ゴム（EPM）、エチレン・プロピレン・非共役ジエン三元共重合ゴム（EPDM）等）及びスチレン系エラストマー（水素添加スチレンーブタジエンブロック共重合体等）から選ばれた少なくとも一種のエラストマーをさらに添加することによって、成形品の衝撃強度や成形反り抑制性を向上させることができる、との内容も記載されている。

## 【0008】

特開平 1 1 - 2 2 8 7 5 9 号公報には、MFR が 1 ～ 1 0 0 0 g / 1 0 分であり、プロピレン単独重合体部分のアイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % 以上で、且つクロス分別クロマトグラフによる 4 0 ℃ 以下の溶出量が 2 . 0 質量%以下であるプロピレン系樹脂（プロピレン単独重合体、エチレン・プロピレンブロック共重合体等） 9 0 ～ 3 0 質量%と、MFR が 0 . 1 ～ 1 0 0 g / 1 0 分であるエラストマー（エチレン・プロピレン共重合体ゴム（EPR）、エチレン・プロピレン・ジエン共重合ゴム（EPDM）等） 1 0 ～ 7 0 質量%と、そのプロピレン系樹脂及びエラストマーの総質量に対して 5 ～ 7 5 質量%の無機フィラー（ガラス繊維等）と、が混練されてなるプロピレン系樹脂組成物が開示されており、かかる構成によれば、射出成形等により成形された成形品は、耐傷付き性及び曲げ弾性率が著しく改良されることとなる、との内容が記載されている。

## 【0009】

## 【発明が解決しようとする課題】

ところで、樹脂成形品の成形方法として、プレス成形法と射出成形法とを挙げることができる。これらを比較してみると、プレス成形法では複雑な形状を成形するのが困難であるのに対し、複雑な形状も容易に成形できる射出成形法では成形の自由度が高い。また、プレス成形法では開口部等は打ち抜き等により後加工

する必要があるのに対し、かかる後加工が不要である射出成形法では加工性が良好である。さらに、プレス成形法では樹脂板（ブランク）の金型へのセット、加熱及び圧縮という工程を経る必要があるのに対し、溶融樹脂を金型に射出して連続的に成形を行える射出成形法では生産性が高い。従って、以上の各観点からは、射出成形法の方がプレス成形法に比べて優れているといえることができる。

## 【 0 0 1 0 】

しかしながら、同一のガラス長繊維強化樹脂材料により成形を行った場合、図 1 2 に示すように、射出成形法で成形された成形品とプレス成形法により成形された成形品とでは同等レベルの曲げ弾性率を有するものの、前者は後者に比較して衝撃強度（アイゾット衝撃値）が著しく低いという問題がある。樹脂成形品の曲げ弾性率は含有するガラス長繊維量に依存するのに対し、衝撃強度は含有するガラス長繊維の繊維長に依存することが知られているが、上記現象は、射出成形法における材料投入から成形に至るまでの間にガラス長繊維が折損されて短くなっていることを意味するものである。事実、プレス成形法では、繊維長 1 0 m m 強のガラス長繊維を有する成形材料で成形した場合、成形品から抽出したガラス長繊維の長さが約 1 0 m m であるのに対し、射出成形法では繊維長 1 0 m m の長繊維を有する成形材料で成形した場合、成形品から抽出したガラス長繊維の長さが約 0 . 9 m m となっているという実験結果が得られている。そして、かかるガラス長繊維の折損は、図 1 3 に示すように、射出成型機のシリンダー内に樹脂の固相 7 と溶融相 8 とが形成され、その固相 7 と溶融相 8 との界面での樹脂相間のせん断によりガラス長繊維が曲げられるために起こる、又は溶融相 8 における樹脂のせん断流動中の座屈によりガラス長繊維が曲げられるために起こる、と考えられている。

## 【 0 0 1 1 】

かかる問題に対して、上記特開平 7 - 2 3 2 3 2 4 号公報に記載されているようにガラス長繊維の分散性及び接着性を向上させることによって衝撃強度の向上を図ることができるが、図 1 4 に示すように、プレス成形品の水準のものを得ることはできない。また、ポリプロピレンエラストマーやポリエチレンエラストマーを添加することによってさらに衝撃強度の向上を図ることもできるが、図 1 4

に示すように、かかる手段では曲げ弾性率が低下するという問題が生じる。

【 0 0 1 2 】

本発明は、かかる点に鑑みてなされたものであり、その目的とするところは、成形加工時におけるガラス長繊維の折損を抑制でき、高い曲げ弾性率と高い衝撃強度とを備えた成形品を成形することができる成形用ガラス長繊維強化樹脂材料を得ることにある。

【 0 0 1 3 】

【課題を解決するための手段】

本発明は、成形用ガラス長繊維強化樹脂材料のマトリックスポリマーとしてアイソタクチックペンタッド分率の高いポリプロピレン成分を有するものを用いて結晶化度を高めると共に、低溶融粘度のものを用いて成形加工時におけるガラス長繊維の折損を抑制することにより、高い曲げ弾性率と高い衝撃強度とを備えた成形品の成形を可能としたものである。

【 0 0 1 4 】

具体的には、本出願の発明は、マトリックスポリマーと、ガラス長繊維と、該マトリックスポリマーと該ガラス長繊維との親和性付与成分とを備え、少なくとも該マトリックスポリマーと該ガラス長繊維とが複合体を形成してなる成形用ガラス長繊維強化樹脂材料において、

上記マトリックスポリマーは、アイソタクチックペンタッド分率が95%以上であるポリプロピレン成分を有し、且つMFR (JIS K7210 (ASTM D1238) 温度: 230℃ 荷重: 21.18N 以下同様) が100～300g/10minであり、

上記ガラス長繊維は、全体質量に対して質量百分率で30～50%含まれていることを特徴とする。

【 0 0 1 5 】

上記の構成によれば、マトリックスポリマーのMFRが適度に高い水準にあるので(分子量が低い)、例えば射出成形機のシリンダー内において成形材料の溶融粘度は全体的に低くなり、そのためにマトリックスポリマーの固相と溶融相との粘度差が小さくなり、それらの相互作用によるガラス長繊維の折損が有効に抑

止されることとなって衝撃強度の高い成形品を得ることができる。加えて、マトリックスポリマーの溶融粘度が低いので、マトリックスポリマーとガラス長繊維との濡れ性が良好なものとなる。また、マトリックスポリマー中のポリプロピレン成分はアイソタクチックペンタッド分率が95%以上である、すなわち、ポリプロピレン成分におけるメチル基の大部分がポリマーチェーンに沿って同じ立体配置となっているので、ポリプロピレン成分同士はできるだけ密に配列して結晶化度が高い状態で固化することとなり、低分子量のマトリックスポリマーにおいても高い曲げ弾性率を有する成形品を得ることができる。

## 【0016】

ここで、MFRはポリマーの溶融粘度の指標となるものであり、JIS K 7210 (ASTM D 1238) に準ずる円管押出流10分間当たりのポリマー吐出量のグラム数である。円管押出の条件は各ポリマー種により試験温度及び試験荷重が選定されるが、本出願におけるMFRは、試験温度が230℃、試験荷重が21.18Nの条件下で計測されるものである。また、ポリマーの溶融粘度は一般に分子量に依存するが、MFRが100g/10minであるポリプロピレンでは分子量が約12万5千に、300g/10minでは約7万に相当するものである。そして、本発明においては、MFRが100~300g/10minであることを要するが、これが100g/10minより低い場合、マトリックスポリマーの溶融粘度が高くなるためガラス長繊維の折損を抑止することができず、衝撃強度の高い成形品を得ることができない。他方、MFRが300g/10minより高い場合、エアの巻き込みにより成形品にボイドを生じ、成形品の衝撃強度が却って低いものになってしまう。

## 【0017】

また、アイソタクチックペンタッド分率は、ポリマーの立体規則性（タクチシチー）の指標となるものである。ポリプロピレンは、モノマー単位に1つのメチル基を有するため立体異性を生じる。そして、ポリマーチェーンに沿ったメチル基の立体配置がランダムなものをアタクチック、交互に立体配置が異なるものをシンジオタクチック、立体配置が同じものをアイソタクチックという。また、ポリプロピレンにおける連続する2つのモノマー単位、すなわち、2連子（ダイア

ッド)を見たとき、これらのメチル基の立体配置が同じものをメソ(m)、異なるものをラセミ(r)という。アイソタクチックペンタッド分率は、任意の5つの連続するモノマー単位、すなわち、5連子(pentad)を見たときのメチル基の立体配置が全て同じ(メソが4つ連続して配列(mmmm)した状態)である割合をいい、mmmm分率ともいう。従って、このアイソタクチックペンタッド分率が高いポリプロピレンは、固化時に分子が規則的に配列して結晶化度が高くなり、それによって成形品の曲げ弾性率も高いものとなる。5連子(pentad)におけるメチル基の立体配置については、高分解能<sup>13</sup>C NMRスペクトルの共鳴領域により各立体配置の帰属が明確化されると共に、その強度により割合が定量化されることとなり、アイソタクチックペンタッド分率は下記式によって算出される。

【0018】

【式1】

$$\text{アイソタクチックペンタッド分率} = \frac{\text{mmmm}}{\text{mmmm} + \text{mmmr} + \text{rmmr} + \text{mmrm} + \text{rmrr} + \text{mmrr} + \text{rmmr} + \text{rrrr} + \text{mmrr} + \text{mrrm}} \times 100$$

【0019】

そして、本発明においては、ポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が95%以上であることを要するが、これが95%より低い場合、高い曲げ弾性率の成形品を得ることができない。

【0020】

さらに、ガラス長繊維は、全体質量に対して質量百分率が30～50%であることを要するが、これが30%より低い場合、高い曲げ弾性率の成形品を得ることができない。他方、質量百分率が50%より高い場合、成形品におけるガラス長繊維含有量が高くなるので、高い曲げ弾性率と高い衝撃強度を備えた成形品を得ることも可能であるが、成形材料の粘度が上昇して流動性が低下することとなり、低溶融粘度のマトリックスポリマーを適用することによりガラス長繊維の折損を抑制するという本発明の作用が適正に営まれず、成形品の耐久性等の面で支障をきたす虞がある。特に、大型の成形品を成形するために成形材料を高压で押

し込むような場合、成形機中及び金型内でガラス長繊維が折損する確率が高くなる。本発明の特徴は、ガラス長繊維含有量が質量百分率で30～50%という範囲において高い曲げ弾性率と高い衝撃強度を備えた成形品が実現される点にあるものである。

## 【0021】

本発明に係る成形用ガラス長繊維強化樹脂材料では、マトリックスポリマーとガラス長繊維との複合体をマスターバッチとし、これをホモポリプロピレン等で希釈して成形用ガラス長繊維強化樹脂材料を構成するようにしてもよく、また、この複合体自体を成形用ガラス長繊維強化樹脂材料として構成するようにしてもよい。

## 【0022】

また、マトリックスポリマーとガラス長繊維との間に親和性を付与する親和性付与成分は、ガラス長繊維の表面処理に用いられているカップリング剤と化学結合する官能基を有する酸変性ポリプロピレンである構成であってもよい。かかる構成によれば、酸変性部分がガラス長繊維表面のカップリング剤と化学結合すると共に、ポリプロピレン部分がマトリックスポリマーのポリプロピレン成分に拡散することとなり、ガラス長繊維とマトリックスポリマーとの間に強固な結合が形成されることとなる。そして、マトリックスポリマーとガラス繊維との間に高い親和性が付与され、それにマトリックスポリマーの溶融粘度が小さい（分子量が小さい）ことも相俟って、ガラス長繊維間にマトリックスポリマーが十分に含浸し、マトリックスポリマー中でのガラス長繊維の分散が良好なものとなる。ここで、酸変性ポリプロピレンは、マトリックスポリマーと共に溶融させてガラス長繊維と複合させるようにして含有させるようにしてもよく、マトリックスポリマーとガラス長繊維との複合体と共に成形機に投入して混合するようにしてもよい。また、かかる酸変性ポリプロピレンとしては、無水マレイン酸、アクリル酸、又はカルボン酸変性のものの他、官能基として水酸基を有するものであってもよい。好適には無水マレイン酸変性ポリプロピレン及びアクリル酸変性ポリプロピレンのうち少なくとも一方を構成成分とするものが用いられる。

## 【0023】

そして、マトリックスポリマーとガラス長繊維、又はそれらと親和性付与成分との複合体の形態は、特に限定されるものではないが、長さ10～12mmの棒状のペレットであって、ガラス長繊維がその長手方向に配向している構成であることが好ましい。かかる構成によれば、成形品のガラス長繊維含有量にバラツキが生じることが無く、且つ十分な衝撃強度を有効に確保することができるからである。すなわち、ペレットの長さが10mm未満では、成形品に含まれるガラス長繊維も短くなり、十分な衝撃強度を得られない。また、ペレットの長さが12mmより長くなると、射出成型機の材料投入口であるホッパーで分級やブリッジが生じ、成形品のガラス長繊維含有量にバラツキを生じることとなる。かかる棒状のペレットは、マトリックスポリマー等を溶融させた浴中にガラス繊維束を浸漬してガラス繊維間に溶融物を含浸させ、これを固化させた後に長手方向に切断する、いわゆる引き抜き法によって製造することができる。

## 【0024】

また、マトリックスポリマーは、アイソタクチックペンタッド分率が95%以上であるポリプロピレン成分を有し、且つMFRが100～300g/10minであるものであれば、特に限定されるものではなく、エチレン・プロピレンブロック共重合体等であってもよく、勿論ホモポリプロピレンであってもよい。

## 【0025】

そして、マトリックスポリマーがホモポリプロピレンである場合には、それにポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が95%以上であるエチレン・プロピレンブロック共重合体が混合されている構成であってもよい。かかる構成によれば、エチレン・プロピレンブロック共重合体が、ポリプロピレン成分中にポリエチレン成分のドメインが形成された海-島構造となっているため、加えられる衝撃がポリプロピレン成分とポリエチレン成分との境界部分でエネルギー吸収されることとなり、衝撃強度のさらなる向上が図られることとなる。ここで、このエチレン・プロピレンブロック共重合体は、マトリックスポリマーと共に溶融させてガラス長繊維と複合させるようにして混合してもよく、また、マトリックスポリマーとガラス長繊維との複合体のマスターバッチと共に成形機に投入して混合してもよい。エチレン・プロピレンブロック共重合体のポリプロピ



レン成分のアイソタクチックペンタッド分率が95%以上であることを要するのは、上記と同様、95%より低ければ高い曲げ弾性率の成形品を得ることができないからである。

## 【0026】

以上の成形用ガラス長繊維強化樹脂材料は、プレス成形、単軸押出成形、2軸押出成形、射出成形等いずれの成形方法にも適用できるものであるが、シリンダー内で樹脂成分を加熱溶融させ、スクリュウによってその溶融物をせん断流動させながら混練する押出成形や射出成形のように、成形材料に極めて過酷な履歴を与える成形方法において、特に著しい作用・効果を奏するものである。

## 【0027】

また、ガラス長繊維の含有率が30～50%であるガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を射出成形して得られる射出成形品として要求される特性としては、含有するガラス長繊維の重量平均繊維長が4mm以上で、且つ曲げ弾性率が5GPa以上、アイゾット衝撃値が25KJ/m<sup>2</sup>以上であり、かかるレベルは、従来達成することができなかったものである。しかしながら、かかる射出成形品を得るための一手段として、本出願の発明に係る成形用ガラス長繊維強化樹脂材料を射出成形に適用することを挙げることができる。そして、そのようにして成形できるものとしては、特に限定されるものではないが、車両のシュラウドモジュール、ドアモジュール、リフトゲートモジュール、バンパーモジュール及びステップ部材等を挙げることができる。

## 【0028】

ここで、重量平均繊維長とは、成形品から所定本数（500～1500本）のガラス長繊維を抽出し、それらの各繊維長を測定して下記式に基づいて算出されるものである。

## 【0029】

【式2】

$$\text{重量平均繊維長} = \frac{\sum (\text{繊維長})^2}{\sum \text{繊維長}}$$

## 【 0 0 3 0 】

また、アイゾット衝撃値は、J I S K 7 1 1 0 ( A S T M D 2 5 6 ) に準ずるアイゾット衝撃試験方法において試験片を破壊するのに要した吸収エネルギーを試験片の切り欠き部の元の断面積で除した値であり、衝撃強度の指標となるものである。

## 【 0 0 3 1 】

そして、樹脂加熱手段、混練用スクリュー及び成形用金型を備えた射出成形機を用いてかかる射出成形品を成形する方法としては、アイソタクチックペンタッド分率が95%以上であり且つMFR ( J I S K 7 2 1 0 温度: 230℃ 荷重: 21.18N ) が100~300g/10minであるホモポリプロピレンとガラス長繊維とが複合して形成されそのガラス長繊維が長手方向に配向した長さ10~12mmの棒状ペレットを有する成形用ガラス長繊維強化樹脂材料を、射出成形機に投入するステップと、射出成形機に投入した樹脂材料を、樹脂加熱手段で加熱することによりその樹脂成分を溶融させると共に混練用スクリューを回転させることにより混練するステップと、加熱及び混練した樹脂材料を、成形用金型に射出することにより、ガラス長繊維が全体質量に対して質量百分率で30~50%含まれると共にその質量平均繊維長が4mm以上であり、且つ曲げ弾性率が5GPa以上、アイゾット衝撃値が25KJ/m<sup>2</sup>以上である射出成形品を成形するステップと、を備えたものが挙げられる。ここで、樹脂加熱手段は、通常、射出成形機のシリンダーに装備されたヒータによりその機能が果たされる。

## 【 0 0 3 2 】

この方法において、ガラス長繊維の折損を抑止するためには、混練用スクリューの回転速度を20~40rpmとするのが好適であり、また、成形用金型への樹脂材料の充填時間を2.5~7.0秒とするのが好適である。

## 【 0 0 3 3 】

また、この方法によって、高い衝撃強度を要する車両のシュラウドモジュールをなす射出成形品を成形することもでき、その場合も上記の混練用スクリューの回転速度及び成形用金型への樹脂材料の充填時間の条件が満たされることが好ま

しい。

【 0 0 3 4 】

さらに、この方法において、成形用ガラス長繊維強化樹脂材料を、ポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が95%以上であるエチレン・プロピレンブロック共重合体が混合されたものとするることにより、射出成形品の衝撃強度のさらなる向上を図るようにしてもよい。

【 0 0 3 5 】

【発明の効果】

以上説明したように本出願の発明によれば、マトリックスポリマーのMFRが適度に高い水準にあるので（分子量が低い）、例えば射出成形機のシリンダー内において成形材料の熔融粘度は全体的に低くなり、そのためにマトリックスポリマーの固相と熔融相との粘度差が小さくなり、それらの相互作用によるガラス長繊維の折損が有効に抑止されることとなって衝撃強度の高い成形品を得ることができる。加えて、マトリックスポリマーの熔融粘度が低いので、ガラス長繊維との濡れ性が良好なものとすることができる。また、マトリックスポリマー中のポリプロピレン成分はアイソタクチックペンタッド分率が95%以上であるので、ポリプロピレン成分同士はできるだけ密に配列して結晶化度が高い状態で固化することとなり、低分子量のマトリックスポリマーにおいても高い曲げ弾性率を有する成形品を得ることができる。

【 0 0 3 6 】

また、マトリックスポリマーとガラス長繊維、又はそれらと親和性付与成分との複合体の形態を、長さ10～12mmの棒状のペレットであって、ガラス長繊維がその長手方向に配向している構成とすることにより、成形品のガラス長繊維含有量にバラツキが生じることが無く、且つ十分な衝撃強度を有効に確保することができる。

【 0 0 3 7 】

また、親和性付与成分を、ガラス長繊維の表面処理に用いられているカップリング剤と化学結合する官能基を有する酸変性ポリプロピレンで構成とすることにより、酸変性部分がガラス長繊維表面のカップリング剤と化学結合を形成すると

共に、ポリプロピレン部分がマトリックスポリマーのポリプロピレン成分に拡散することとなり、ガラス長繊維とマトリックスポリマーとの間に強固な結合を形成させることができる。加えて、マトリックスポリマーとガラス長繊維との間に高い親和性が付与され、これにマトリックスポリマーの溶融粘度が小さい（分子量が小さい）ことも相俟って、ガラス長繊維間にマトリックスポリマーが十分に含浸し、マトリックスポリマー中でのガラス長繊維の分散を良好なものとすることができる。

## 【 0 0 3 8 】

また、マトリックスポリマーがホモポリプロピレンである場合に、それにポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % 以上であるエチレン・プロピレンブロック共重合体が混合されている構成とすることにより、エチレン・プロピレンブロック共重合体がポリプロピレン成分中にポリエチレン成分のドメインが形成された海-島構造となっているため、加えられる衝撃がポリプロピレン成分とポリエチレン成分との境界部分でエネルギー吸収されることとなり、衝撃強度のさらなる向上を図ることができる。

## 【 0 0 3 9 】

また、本出願の発明に係る成形用ガラス長繊維強化樹脂材料を射出成形することにより、含有するガラス長繊維の重量平均繊維長が 4 m m 以上であり、且つ曲げ弾性率が 5 G P a 以上、アイゾット衝撃値が 2 5 K J / m<sup>2</sup> 以上である射出成形品を得ることができる。具体的には、車両のシュラウドモジュール、ドアモジュール、リフトゲートモジュール、バンパーモジュール及びステップ部材等としても物理特性として適用可能な射出成形品を得ることができる。

## 【 0 0 4 0 】

## 【発明の実施の形態】

## ＜ガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂＞

本発明の実施形態に係るガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂は、マトリックスポリマー、ガラス長繊維、及びマトリックスポリマーとガラス長繊維との間に親和性を付与する親和性付与成分からなる複合体であるペレット状のマスターバッチに、ペレット状のエチレン・プロピレンブロック共重合体が希釈材として混

合されて形成されている。

【 0 0 4 1 】

マトリックスポリマーは、アイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % 以上であり、且つ MRF が 1 0 0 ~ 3 0 0 g / 1 0 m i n (分子量 7 万 ~ 1 2 万 5 千) であるホモポリプロピレンである。

【 0 0 4 2 】

ガラス長繊維は、E ガラス等の無アルカリガラスであり、表面はアミノシラン等のカップリング剤で処理されている。

【 0 0 4 3 】

親和性付与成分は、ガラス長繊維に表面処理されているカップリング剤と化学反応する官能基を有し、マトリックスポリマーであるホモポリプロピレンに拡散容易な無水マレイン酸変性ポリプロピレン又はアクリル酸変性ポリプロピレン等の酸変性ポリプロピレンである。ここで、ホモポリプロピレンと酸変性ポリプロピレンとの混合割合は、前者が 5 ~ 9 5 % であるのに対し、後者が 9 5 ~ 5 % である。

【 0 0 4 4 】

マスターバッチのペレットは、長さ 1 0 ~ 1 2 m m の棒状であり、ガラス長繊維がその長手方向に配向した形態となっている。かかるペレット状のマスターバッチは、ホモポリプロピレンと酸変性ポリプロピレンとを溶融させた浴中にガラス繊維束を浸漬してガラス繊維間に溶融物を含浸させ、これを固化させた後に長手方向に切断する、いわゆる引き抜き法によって製造することができる。

【 0 0 4 5 】

マスターバッチに希釈材として混合されたエチレン・プロピレンブロック共重合体は、ポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % 以上である。そして、このエチレン・プロピレンブロック共重合体をマスターバッチに混合することにより、ガラス長繊維の全質量に対する質量百分率が 3 0 ~ 5 0 % となるようにされている。

【 0 0 4 6 】

上記構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂によれば、マトリックスポリ

マーのMFRが適度に高い水準にあるので（分子量が低い）、射出成形機のシリンダー内において成形材料の熔融粘度は全体的に低くなり、そのためにマトリックスポリマーの固相と熔融相との粘度差が小さくなり、それらの相互作用によるガラス長繊維の折損が有効に抑止されることとなって衝撃強度の高い成形品を得ることができる。加えて、マトリックスポリマーの熔融粘度が低いので、マトリックスポリマーとガラス長繊維との濡れ性は良好である。また、マトリックスポリマーであるホモポリプロピレンはアイソタクチックペンタッド分率が95%以上である、すなわち、メチル基の大部分がポリマーチェーンに沿って同じ立体配置となっているので、分子同士はできるだけ密に配列して結晶化度が高い状態で固化することとなり、低分子量のマトリックスポリマーにおいても高い曲げ弾性率を有する成形品を得ることができる。

## 【0047】

また、親和性付与成分として、無水マレイン酸変性ポリプロピレン又はアクリル酸変性ポリプロピレン等の酸変性ポリプロピレンが用いられているので、酸変性部分がガラス長繊維表面のカップリング剤と化学結合すると共に、ポリプロピレン部分がマトリックスポリマーであるホモポリプロピレンに拡散し、ガラス長繊維とマトリックスポリマーとの間に強固な結合が形成されるようになっている。また、引き抜き法によるマスターバッチの製造上、マトリックスポリマーのガラス繊維への含浸が十分でない場合、図1（a）に示すように、マトリックスポリマー2a中でガラス長繊維3aが十分に分散しないペレット1aが得られるが、本実施形態では上記酸変性ポリプロピレンが用いられていることによって、マトリックスポリマーとガラス繊維との間に高い親和性が付与され、これにマトリックスポリマーの熔融粘度が小さい（分子量が小さい）ことも相俟って、ガラス繊維間にマトリックスポリマーが十分に含浸し、図1（b）に示すように、ペレット1bのマトリックスポリマー2b中でのガラス長繊維3bの分散性が良好なものとなっている。

## 【0048】

そして、マスターバッチの形態が長さ10～12mmの棒状のペレットであって、ガラス長繊維がその長手方向に配向しているので、成形品のガラス長繊維含

有量にバラツキが生じることが無く、且つ十分な衝撃強度を有効に確保することができる。

#### 【 0 0 4 9 】

さらに、マスターバッチに希釈材としてポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % 以上であるエチレン・プロピレンブロック共重合体が混合されている。エチレン・プロピレンブロック共重合体は、図 2 に示すように、ポリプロピレン成分 4 中にポリエチレン成分 5 のドメインが形成された海-島構造となっているので、加えられる衝撃がポリプロピレン成分 4 とポリエチレン成分 5 との境界部分でエネルギー吸収されることとなり、成形品の衝撃強度のさらなる向上が図られている。

#### < 射出成形機 >

上記ガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂は、射出成形機によって射出成形される。

#### 【 0 0 5 0 】

この射出成形機では、スクリーに設けられたフライトのピッチ及びフライト溝が従来のものに比べて大きく形成されている。これによって、フライト部でのガラス長繊維にかかるせん断力が低減されるようになっている。また、逆流防止弁における成形材料の流路が従来のものに比べて大きく設けられており、また、押し金にスプラインが設けられていない。これによって、射出成形機のヘッド部でのガラス長繊維にかかるせん断力が低減されるようになっている。これらによって、射出成形機の改良によりガラス長繊維の折損抑止を図っている。

#### 【 0 0 5 1 】

そして、成形条件としては、樹脂温度を 2 5 0 ~ 2 6 0 °C 金型温度を 6 0 ~ 8 0 °C スクリュー回転数を 2 0 ~ 4 0 r p m 背圧を 0 ~ 1 0 k g f / c m <sup>2</sup>、射出速度 2 . 5 ~ 7 . 0 秒（充填時間）、及び射出圧 9 9 % とすることが好適である。

#### < 射出成形品 >

図 3 は、上記ガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂を上記射出成型機に投入して成形したシュラウドモジュール 6 を示す。このシュラウドモジュール 6 は、シ

ユラウドアッパー、シュラウドサイドメンバー、ヘッドランプ支持部、ラジエータ及びコンデンサー支持部、冷却ファンモータ支持部、ボンネットラッチ支持部等が一体に成形されたものである。

## 【 0 0 5 2 】

このシュラウドモジュール6を形成するガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂は、マスターバッチのマトリックスポリマーがアイソタクチックペンタッド分率95%以上であり、且つMFRが100~300g/10minであるホモポリプロピレンである。また、ガラス長繊維の全体質量に対する質量百分率は30~50%となっている。従って、このシュラウドモジュール6は、ガラス長繊維の折損が有効に抑止され、高い曲げ弾性率と高い衝撃強度とを備えた射出成形品となっている。具体的には、含有するガラス長繊維の重量平均繊維長が4mm以上であり、且つ曲げ弾性率が5GPa以上、アイゾット衝撃値が25KJ/m<sup>2</sup>以上となっている。かかるレベルは、ガラス長繊維の含有率が30~50%である成形材料を射出成形して成形されたシュラウドモジュールでは従来達成できなかったものである。

## 【 0 0 5 3 】

また、従来23部品で構成されていたシュラウドモジュールが、射出成形によって一体化したものを得ることができるので、部品点数低減、コスト低減等が図られることとなる。

(その他の実施形態)

上記実施形態では、マスターバッチにエチレン・プロピレンブロック共重合体を混合してガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂を構成したが、ガラス長繊維の質量百分率を30~50%とするマスターバッチをそのまま成形材料として適用してもよい。

## 【 0 0 5 4 】

また、上記実施形態では、射出成形によりシュラウドモジュール6を成形したが、特にこれに限定されるものではなく、ドアインナーパネルであってガラス昇降部材支持部、トリム支持部等が一体成形されたドアモジュール、リフトゲートインナーパネルであってリヤワイパー駆動部材支持部、トリム支持部等が一体成



形されたリフトゲートモジュール、レインフォースメント、衝撃吸収部材等が一体成形されたバンパーモジュール、車両のサイドドア下方又はリフトゲート下方に設けられる乗降用のステップ部材等を成形しても強度的に適用可能な成形品を得ることができる。

【 0 0 5 5 】

【実施例 1】

(試験評価サンプル)

以下の各例に係るガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を試験評価サンプルとして調整した。また、各例の構成について表 1 に示す。

【 0 0 5 6 】

－例 1－

アイソタクチックペンタッド分率が 9 8 % で、MFR が  $120\text{ g}/10\text{ min}$  (重量平均分子量  $M_w = 101200$ ) であるホモポリプロピレンと、アクリル酸変性ポリプロピレンとの溶融物にガラス繊維束を浸漬した後に固化させ、これを長手方向に平均長さ 10 mm に切断してなるペレット状のマスターバッチ (チッソ株式会社製 XLR2948) を準備した。このマスターバッチは、ホモポリプロピレン 4 7 %、アクリル酸変性ポリプロピレン 5 % 及びガラス長繊維 4 8 % の各重量百分率で構成されているものであった。

【 0 0 5 7 】

そして、このマスターバッチ 100 重量部に対し、希釈材としてプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % であるペレット状のエチレン・プロピレンブロック共重合体 (チッソ株式会社製 K9230) を 20 重量部混合し、このようにして構成されたガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 1 とした。なお、希釈によりガラス長繊維の全体質量に対して占める重量百分率は 4 0 % となった。

【 0 0 5 8 】

－例 2－

ホモポリプロピレンとしてアイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % で、MFR が  $120\text{ g}/10\text{ min}$  ( $M_w = 106500$ ) のものを用いた他は例 1 と同

一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 2 とした。

【 0 0 5 9 】

－例 3－

ホモポリプロピレンとしてアイソタクチックペンタッド分率が 9 4 . 5 % で、MFR が 1 2 0 g / 1 0 m i n (Mw = 1 1 2 0 0 0) のものを用いた他は例 1 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 3 とした。

【 0 0 6 0 】

－例 4－

ホモポリプロピレンとしてアイソタクチックペンタッド分率が 9 2 % で、MFR が 1 2 0 g / 1 0 m i n (Mw = 1 1 9 0 0 0) のものを用いた他は例 1 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 4 とした。

【 0 0 6 1 】

－例 5－

アイソタクチックペンタッド分率が 9 8 % で、MFR が 6 0 g / 1 0 m i n (Mw = 1 7 1 0 0 0) であるホモポリプロピレンと、アクリル酸変性ポリプロピレンポリマーとの溶融物にガラス繊維束を浸漬した後に固化させ、これを長手方向に平均長さ 1 0 m m に切断してなるペレット状のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を準備し、これを例 5 とした。この樹脂材料は、ホモポリプロピレン 5 0 %、アクリル酸変性ポリプロピレンポリマー 1 0 % 及びガラス長繊維 4 0 % の各重量百分率で構成されているものであった。

【 0 0 6 2 】

－例 6－

ホモポリプロピレンの MFR が 8 0 g / 1 0 m i n (Mw = 1 5 0 1 0 0) であるものを用いた他は例 5 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 6 とした。

【 0 0 6 3 】

－例 7－

ホモポリプロピレンの MFR が 1 0 0 g / 1 0 m i n (Mw = 1 2 0 0 0 0) であるものを用いた他は例 5 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂

材料を例 7 とした。

【 0 0 6 4 】

－例 8－

ホモポリプロピレンの MFR が  $120 \text{ g} / 10 \text{ min}$  ( $M_w = 101200$ ) であるものを用いた他は例 5 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 8 とした。

【 0 0 6 5 】

－例 9－

ホモポリプロピレンの MFR が  $150 \text{ g} / 10 \text{ min}$  ( $M_w = 93400$ ) であるものを用いた他は例 5 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 9 とした。

【 0 0 6 6 】

－例 10－

ホモポリプロピレンの MFR が  $300 \text{ g} / 10 \text{ min}$  ( $M_w = 70100$ ) であるものを用いた他は例 5 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 10 とした。

【 0 0 6 7 】

－例 11－

ホモポリプロピレンの MFR が  $400 \text{ g} / 10 \text{ min}$  ( $M_w = 65100$ ) であるものを用いた他は例 5 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 11 とした。

【 0 0 6 8 】

－例 12－

ホモポリプロピレンのアイソタクチックペンタッド分率が 94.5% で、MFR が  $60 \text{ g} / 10 \text{ min}$  ( $M_w = 184000$ ) であるものを用いた他は例 5 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 12 とした。

【 0 0 6 9 】

－例 13－

ホモポリプロピレンの MFR が  $80 \text{ g} / 10 \text{ min}$  ( $M_w = 159000$ ) で

あるものを用いた他は例 1 2 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 1 2 とした。

【 0 0 7 0 】

－例 1 4－

ホモポリプロピレンの MFR が  $100\text{ g}/10\text{ min}$  ( $M_w = 136000$ ) であるものを用いた他は例 1 2 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 1 4 とした。

【 0 0 7 1 】

－例 1 5－

ホモポリプロピレンの MFR が  $120\text{ g}/10\text{ min}$  ( $M_w = 126200$ ) であるものを用いた他は例 1 2 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 1 5 とした。

【 0 0 7 2 】

－例 1 6－

ホモポリプロピレンの MFR が  $150\text{ g}/10\text{ min}$  ( $M_w = 110400$ ) であるものを用いた他は例 1 2 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 1 6 とした。

【 0 0 7 3 】

－例 1 7－

ホモポリプロピレンの MFR が  $300\text{ g}/10\text{ min}$  ( $M_w = 70100$ ) であるものを用いた他は例 1 2 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 1 7 とした。

【 0 0 7 4 】

－例 1 8－

ホモポリプロピレンの MFR が  $400\text{ g}/10\text{ min}$  ( $M_w = 65100$ ) であるものを用いた他は例 1 2 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 1 8 とした。

【 0 0 7 5 】

－例 1 9－

マスターバッチを、ホモポリプロピレン 5 2 % 及びガラス長繊維 4 8 % の各重量百分率で構成したことを除いては例 1 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 2 1 とした。すなわち、例 1 9 はマスターバッチに酸変性ポリプロピレンポリマーが含まれていないものとした。

## 【 0 0 7 6 】

## －例 2 0－

アイソタクチックペンタッド分率が 9 8 % で、MFR が 1 2 0 g / 1 0 m i n (重量平均分子量  $M_w = 1 0 1 2 0 0$ ) であるホモポリプロピレンと、無水マレイン酸変性ポリプロピレンポリマーとの溶融物にガラス繊維束を浸漬した後に固化させ、これを長手方向に平均長さ 1 0 m m に切断してなるペレット状のマスターバッチを準備した。このマスターバッチは、ホモポリプロピレン 4 5 %、無水マレイン酸変性ポリプロピレンポリマー 7 % 及びガラス長繊維 4 8 % の各重量百分率で構成されているものであった。

## 【 0 0 7 7 】

そして、このマスターバッチ 1 0 0 重量部に対し、希釈材としてプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % であるペレット状のエチレン・プロピレンブロック共重合体 (チッソ株式会社製 K 9 2 3 0) を 2 0 重量部混合し、このようにして構成されたガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 2 0 とした。なお、希釈によりガラス長繊維の全体質量に対して占める重量百分率は 4 0 % となった。

## 【 0 0 7 8 】

## －例 2 1－

マスターバッチを、ホモポリプロピレン 4 2 %、アクリル酸変性ポリプロピレンポリマー 1 0 % 及びガラス長繊維 4 8 % の各重量百分率で構成したことを除いては例 1 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 2 1 とした。

## 【 0 0 7 9 】

## －例 2 2－

マスターバッチを、ホモポリプロピレン 3 2 %、アクリル酸変性ポリプロピレ

ンポリマー 2 0 % 及びガラス長繊維 4 8 % の各重量百分率で構成したことを除いては例 1 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 2 2 とした。

【 0 0 8 0 】

－例 2 3－

マスターバッチを、ホモポリプロピレン 4 7 %、無水マレイン酸変性ポリプロピレンポリマー 5 % 及びガラス長繊維 4 8 % の各重量百分率で構成したことを除いては例 2 0 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 2 3 とした。

【 0 0 8 1 】

－例 2 4－

マスターバッチを、ホモポリプロピレン 4 2 %、無水マレイン酸変性ポリプロピレンポリマー 1 0 % 及びガラス長繊維 4 8 % の各重量百分率で構成したことを除いては例 2 0 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 2 4 とした。

【 0 0 8 2 】

－例 2 5－

マスターバッチを、ホモポリプロピレン 3 2 %、無水マレイン酸変性ポリプロピレンポリマー 2 0 % 及びガラス長繊維 4 8 % の各重量百分率で構成したことを除いては例 2 0 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 2 5 とした。

【 0 0 8 3 】

－例 2 6－

希釈材としてプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が 9 6 % であるペレット状のエチレン・プロピレンブロック共重合体を用いた他は例 1 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 2 6 とした。

【 0 0 8 4 】

－例 2 7－

希釈材としてプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が 9 2 % であ

るペレット状のエチレン・プロピレンブロック共重合体を用いた他は例 1 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 2 7 とした。

## 【 0 0 8 5 】

## －例 2 8－

アイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % で、MFR が  $120\text{ g}/10\text{ min}$  ( $M_w = 106500$ ) であるホモポリプロピレンと、無水マレイン酸変性ポリプロピレンポリマーとの溶融物にガラス繊維束を浸漬した後に固化させ、これを長手方向に平均長さ 10 mm に切断してなるペレット状のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を準備し、これを例 2 8 とした。この樹脂材料は、ホモポリプロピレン 4 5 %、アクリル酸変性ポリプロピレンポリマー 7 % 及びガラス長繊維 4 8 % の各重量百分率で構成されているものであった。

## 【 0 0 8 6 】

## －例 2 9－

ホモポリプロピレン 4 2 %、無水マレイン酸変性ポリプロピレンポリマー 1 0 % 及びガラス長繊維 4 8 % の各重量百分率で構成したことを除いては例 2 8 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 2 9 とした。

## 【 0 0 8 7 】

## －例 3 0－

ホモポリプロピレンとして MFR が  $100\text{ g}/10\text{ min}$  ( $M_w = 123000$ ) であるものを用いた他は例 2 8 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 3 0 とした。

## 【 0 0 8 8 】

## －例 3 1－

アイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % で、MFR が  $60\text{ g}/10\text{ min}$  ( $M_w = 182000$ ) であるホモポリプロピレンと、無水マレイン酸変性ポリプロピレンポリマーとの溶融物にガラス繊維束を浸漬した後に固化させ、これを長手方向に平均長さ 10 mm に切断してなるペレット状のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を準備し、これを例 3 1 とした。この樹脂材料は、ホモポリプロピレン 3 2 %、無水マレイン酸変性ポリプロピレンポリマー 2 0 % 及びガラス

長繊維 4 8 % の各重量百分率で構成されているものであった。

【 0 0 8 9 】

－例 3 2－

ホモポリプロピレンとして MFR が  $150\text{ g}/10\text{ min}$  ( $M_w = 95000$ ) であるものを用いた他は例 3 1 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 3 2 とした。

【 0 0 9 0 】

－例 3 3－

希釈材としてアイソタクチックペンタッド分率が 9 6 % であるペレット状のホモポリプロピレンを用いた他は例 1 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 3 3 とした。

【 0 0 9 1 】

－例 3 4－

希釈材としてアイソタクチックペンタッド分率が 9 6 % であるペレット状のホモポリプロピレンを用いた他は例 2 0 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 3 4 とした。

【 0 0 9 2 】

－例 3 5－

アイソタクチックペンタッド分率が 9 4 . 5 % で、MFR が  $60\text{ g}/10\text{ min}$  ( $M_w = 178000$ ) であるエチレン・プロピレンブロック共重合体と、アクリル酸変性ポリプロピレンポリマーとの溶融物にガラス繊維束を浸漬した後に固化させ、これを長手方向に平均長さ  $10\text{ mm}$  に切断してなるペレット状のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を準備し、これを例 3 5 とした。この樹脂材料は、エチレン・プロピレンブロック共重合体 5 0 %、アクリル酸変性ポリプロピレンポリマー 1 0 % 及びガラス長繊維 4 0 % の各重量百分率で構成されているものであった。

【 0 0 9 3 】

－例 3 6－

エチレン・プロピレンブロック共重合体の MFR が  $80\text{ g}/10\text{ min}$  ( $M_w$



= 1 5 3 0 0 0 ) であるものを用いた他は例 3 5 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 3 6 とした。

【 0 0 9 4 】

－例 3 7－

エチレン・プロピレンブロック共重合体の MFR が 1 0 0 g / 1 0 m i n ( M w = 1 2 0 1 0 0 ) であるものを用いた他は例 3 5 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 3 7 とした。

【 0 0 9 5 】

－例 3 8－

エチレン・プロピレンブロック共重合体の MFR が 1 2 0 g / 1 0 m i n ( M w = 1 1 1 8 0 0 ) であるものを用いた他は例 3 5 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 3 6 とした。

【 0 0 9 6 】

－例 3 9－

エチレン・プロピレンブロック共重合体の MFR が 1 5 0 g / 1 0 m i n ( M w = 1 0 3 2 0 0 ) であるものを用いた他は例 3 5 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 3 9 とした。

【 0 0 9 7 】

－例 4 0－

エチレン・プロピレンブロック共重合体の MFR が 3 0 0 g / 1 0 m i n ( M w = 7 0 0 0 0 ) であるものを用いた他は例 3 5 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 4 0 とした。

【 0 0 9 8 】

－例 4 1－

エチレン・プロピレンブロック共重合体の MFR が 4 0 0 g / 1 0 m i n ( M w = 6 5 1 0 0 ) であるものを用いた他は例 3 5 と同一構成のガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料を例 4 1 とした。

【 0 0 9 9 】

【表 1】

	ポリプロピレンホモポリマー				融和性付与成分		ガラス繊維		希釈材	
	アイソタック ヘンダット分率%	MFR g/10min	重量平均分子量 Mw	配合量 %	ポリプロピレン 変性剤	配合量 %	ガラス繊維 配合量 %	希釈材種	アイソタック ヘンダット分率%	マスターバッチ100 に対する配合量
例1	98	120	101200	47	アクリル酸	5	48	エチレン・プロピレン共重合体	95	20
例2	95	120	106500	47	アクリル酸	5	48	エチレン・プロピレン共重合体	95	20
例3	94.5	120	112000	47	アクリル酸	5	48	エチレン・プロピレン共重合体	95	20
例4	92	120	119000	47	アクリル酸	5	48	エチレン・プロピレン共重合体	95	20
例5	98	60	171000	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例6	98	80	150100	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例7	98	100	120000	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例8	98	120	101200	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例9	98	150	93400	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例10	98	300	70100	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例11	98	400	65100	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例12	94.5	60	184000	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例13	94.5	80	159000	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例14	94.5	100	136000	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例15	94.5	120	126200	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例16	94.5	150	110400	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例17	94.5	300	70100	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例18	94.5	400	65100	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例19	98	120	101200	52	／	／	48	エチレン・プロピレン共重合体	95	20
例20	98	120	101200	45	無水マレイン酸	7	48	エチレン・プロピレン共重合体	95	20
例21	98	120	101200	42	アクリル酸	10	48	エチレン・プロピレン共重合体	95	20
例22	98	120	101200	32	アクリル酸	20	48	エチレン・プロピレン共重合体	95	20
例23	98	120	101200	47	無水マレイン酸	5	48	エチレン・プロピレン共重合体	95	20
例24	98	120	101200	42	無水マレイン酸	10	48	エチレン・プロピレン共重合体	95	20
例25	98	120	101200	32	無水マレイン酸	20	48	エチレン・プロピレン共重合体	95	20
例26	98	120	101200	47	アクリル酸	5	48	エチレン・プロピレン共重合体	96	20
例27	98	120	101200	47	アクリル酸	5	48	エチレン・プロピレン共重合体	92	20
例28	95	120	106500	45	無水マレイン酸	7	48	／	／	／
例29	95	120	106500	42	無水マレイン酸	10	48	／	／	／
例30	95	100	125000	45	無水マレイン酸	7	48	／	／	／
例31	95	60	182000	32	無水マレイン酸	20	48	／	／	／
例32	95	150	95000	32	無水マレイン酸	20	48	／	／	／
例33	98	120	101200	47	アクリル酸	5	48	／	／	／
例34	98	100	112000	47	無水マレイン酸	7	48	ネリノロピレンホモポリマー	96	20
例35	94.5	60	178000	50	アクリル酸	10	40	ネリノロピレンホモポリマー	96	20
例36	94.5	80	153000	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例37	94.5	100	120100	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例38	94.5	120	111800	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例39	94.5	150	103200	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例40	94.5	300	70000	50	アクリル酸	10	40	／	／	／
例41	94.5	400	65100	50	アクリル酸	10	40	／	／	／

【0100】

(試験評価方法)

&lt;重量平均繊維長&gt;

調整した各例に係るガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料により板状の試

験片を射出成形した。次いで、成形した試験片から約 1 0 0 0 本のガラス長繊維を抽出すると共に、それぞれの長さを計測した。そして、次式に従って重量平均繊維長を算出した。

【0 1 0 1】

【式 3】

$$\text{重量平均繊維長} = \frac{\sum (\text{繊維長})^2}{\sum \text{繊維長}}$$

【0 1 0 2】

＜曲げ弾性率＞

調整した各例に係るガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料により板状の試験片を射出成形した。次いで、この試験片を用い、J I S K 7 1 7 1 (A S T M D 7 9 0) に準じて曲げ試験を実施した。

【0 1 0 3】

そして、得られた試験チャートから曲げ弾性率を求めた。

＜アイゾット衝撃値＞

調整した各例に係るガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料により一辺が 1 2 . 7 m m の正方形断面で、長さが 6 4 . 0 m m の棒状体を射出成形した。そして、J I S K 7 1 1 0 (A S T M D 2 5 6) のアイゾット衝撃試験方法に示されているように、各棒状体に切り欠き部を設けて 2 号 A 試験片を作成した。このとき、各試験片の切り欠き部の幅等を計測した。次いで、この試験片を用い、同規格に準じてアイゾット衝撃試験を実施した。

【0 1 0 4】

そして、ハンマの回転軸周りのモーメント (W R) と、ハンマの持ち上げ角度 (α) と、試験片破壊後のハンマの振り上がり角度 (β) と、衝撃試験時のエネルギー損失 (L) とから、次式に基づき試験片を破壊するのに要した吸収エネルギー (E) を算出した。

【0 1 0 5】

【式 4】

$$E = WR (\cos \alpha - \cos \beta) - L$$

【0 1 0 6】

さらに、この吸収エネルギー（E）と、試験片の切り欠き部の幅（b）と、試験片の切り欠き部付近の厚さ（t）と、試験片の切り欠き深さ（d）とから、次式に基づきアイゾット衝撃値（ $a_{kl}$ ）を算出した。

【0 1 0 7】

【式 5】

$$a_{kl} = \frac{E}{b(t-d)} \times 1000$$

【0 1 0 8】

（試験評価結果）

試験結果は表 2 に示す。

【0 1 0 9】

【表 2】

	重量平均繊維長 mm	曲げ弾性率 GPa	アイソット衝撃値 kJ/m <sup>2</sup>
例1	4.5	5.6	32
例2	4.4	5.3	30
例3	4.1	4.9	31
例4	3.8	4.2	30
例5	2.9	7.1	18
例6	3.7	6.2	21
例7	4.1	5.7	25
例8	4.3	5.8	28
例9	5.7	5.7	30
例10	6.1	5.6	34
例11	6	4.9	28
例12	1.4	5.7	11
例13	2.4	5.1	17
例14	2.8	5.1	19
例15	3.1	5	20
例16	3.5	4.9	25
例17	4.3	4.8	33
例18	4.4	4.8	29
例19	4.3	3.9	15
例20	4.2	5.1	26
例21	4.6	5.3	28
例22	4.5	5.1	27
例23	4.5	5	25
例24	4.6	5.4	28
例25	4.5	5.1	29
例26	4.7	5.7	30
例27	3.8	4.7	26
例28	4.3	7.5	30
例29	4.5	7.2	28
例30	4	7.6	27
例31	2.5	4.9	18
例32	4	5.7	26
例33	4.7	5.8	30
例34	4.5	5.4	28
例35	2	5.5	20
例36	2.3	5.4	23
例37	2.7	5	24
例38	3.3	4.8	28
例39	4	4.5	32
例40	4.4	4.5	37
例41	4.6	4.8	32

【0 1 1 0】

＜マトリックスポリマーであるポリプロピレンのアイソタクチックペンタッド分率の影響について＞

図 4 は、ホモポリプロピレンのアイソタクチックペンタッド分率と、重量平均

繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値との各関係を例 1 ～ 4 についての試験結果に基づいて示したものである。

【 0 1 1 1 】

同図によれば、ホモポリプロピレンのアイソタクチックペンタッド分率が高くなるに従って、重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値のいずれもが向上していることが分かる。

【 0 1 1 2 】

ここで、重量平均繊維長が長くなる理由については明らかではない。

【 0 1 1 3 】

曲げ弾性率が向上しているのは、アイソタクチックペンタッド分率が高くなるに従って、ポリプロピレンにおけるメチル基がポリマーチェーンに沿って同じ立体配置となる割合が高くなり、そのためにポリプロピレン分子同士ができるだけ密に配列して、より結晶化度が高い状態で固化するためであると考えられる。

【 0 1 1 4 】

アイゾット衝撃値が向上しているのは、重量平均繊維長が長くなっていることに起因するものであると共にポリプロピレン成分の結晶化度が高くなるためであると考えられる。

【 0 1 1 5 】

これらの例の比較によれば、アイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % である例 3 及び 9 8 % である例 1 において、重量平均繊維長が 4 m m 以上、曲げ弾性率が 5 G P a 以上及びアイゾット衝撃値が 3 0 K J / m<sup>2</sup> 以上の射出成形品が得られることとなる。

<マトリックスポリマーの M F R の影響について>

図 5 は、マトリックスポリマーの M F R と、重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値との各関係を例 5 ～ 1 8 及び例 3 5 ～ 4 1 についての試験結果に基づいて示したものである。また、例 2 8 と例 3 0、及び例 3 1 と例 3 2 の試験結果についても図 5 に併せて示している。

【 0 1 1 6 】

同図によれば、アイソタクチックペンタッド分率が 9 8 % であるホモポリプロ

ピレンをマトリックスポリマーとした例 5 ～ 1 1、アイソタクチックペンタッド分率が 9 4. 5 % であるホモポリプロピレンをマトリックスポリマーとした例 1 2 ～ 1 8 及びアイソタクチックペンタッド分率が 9 4. 5 % であるエチレン・プロピレンブロック共重合体をマトリックスポリマーとした例 3 5 ～ 4 1 のいずれも、MFR が大きくなるのに伴う（分子量が小さくなるのに伴う）重量平均分子量、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値の挙動は同一である。

## 【 0 1 1 7 】

すなわち、重量平均繊維長は、MFR が 1 5 0 g / 1 0 m i n となるまではその増大に伴って長くなっている。これは、マトリックスポリマーの分子量が小さくなることに伴いその溶融粘度が低下し、それによって射出成形過程におけるガラス繊維の折損が有効に抑止されるようになったためであると考えられる。また、重量平均繊維長は、MFR が 1 5 0 g / 1 0 m i n を越えると若干の向上傾向は伺われるものの、その向上度は小さいものとなっている。

## 【 0 1 1 8 】

曲げ弾性率は、MFR が 1 5 0 g / 1 0 m i n となるまではその増大に伴って低下している。これは、マトリックスポリマーの分子量が小さくなることに起因したものであると考えられる。また、曲げ弾性率は、MFR が 1 5 0 g / 1 0 m i n を越えるとほぼ同水準を推移する傾向が伺われる。

## 【 0 1 1 9 】

アイゾット衝撃値は、MFR が 3 0 0 g / 1 0 m i n となるまではその増大に伴って向上している。これは、上記と同様にガラス繊維の折損が有効に抑止されるようになったためであると考えられる。また、アイゾット衝撃値は、MFR が 3 0 0 g / 1 0 m i n を越えると低下している。これは、マトリックスポリマーの溶融粘度が低くなりすぎて、エアの巻き込みにより成形品にボイドが生じたためであると考えられる。

## 【 0 1 2 0 】

これらの例の比較によれば、アイソタクチックペンタッド分率が 9 8 % であり、MFR が 1 0 0 ～ 3 0 0 g / 1 0 m i n であるホモポリプロピレンをマトリックスポリマーとする例 7 ～ 1 0 において、重量平均繊維長が 4 m m 以上、曲げ弾

性率が 5 GPa 以上及びアイゾット衝撃値が 25 KJ/m<sup>2</sup>以上の射出成形品が得られることとなる。

#### 【0121】

例 28 と例 30 とはマトリックスポリマーであるポリプロピレンの MFR のみを異にするものである。図 5 に示すように、各特性が上記と同様の挙動を示している傾向が伺われる。曲げ弾性率が他の例よりも高い水準にある点が特徴となっている。

#### 【0122】

例 31 と例 32 とはマトリックスポリマーであるポリプロピレンの MFR のみを異にするものである。図 5 (b) に示すように、MFR が 60 g/10 min である例 31 よりも MFR が 150 g/10 min である例 32 の方が曲げ弾性率が高く、上記とは逆の傾向が見られる。しかしながら、図 5 (a) 及び (c) に示すように、重量平均繊維長及びアイゾット衝撃値の結果を見る限りにおいては、例 31 及び例 32 が特異な挙動を示すものではないと考えられる。

#### 【0123】

また、アイソタクチックペンタッド分率が 98% であるホモポリプロピレンをマトリックスポリマーとした例 5～11 と、アイソタクチックペンタッド分率が 94.5% であるホモポリプロピレンをマトリックスポリマーとした例 12～18 とを比較すると、重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値のいずれにおいても前者の方が高い水準にあることが確認できる。この理由については、ホモポリプロピレンをマトリックスポリマーとしてアイソタクチックペンタッド分率を変量した場合と同様であると考えられる。

#### 【0124】

なお、マトリックスポリマーをホモポリプロピレンとした例 11～18 と、エチレン・プロピレン共重合体とした例 35～41 との比較については後述する。  
 <親和性付与成分である酸変性ポリプロピレンの影響について>

図 6 は、例 19 と例 1 と例 20 との試験結果に基づいて、それらの重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値を比較したものである。ここで、例 19 はマトリックスポリマーであるホモポリプロピレンとガラス長繊維との親和性付



与成分を含まない構成であり、例 1 はアクリル酸変性ポリプロピレンを、例 2 0 は無水マレイン酸変性ポリプロピレンをそれぞれ親和性付与成分として含む構成である。

#### 【0 1 2 5】

同図によれば、親和性付与成分を含まない例 1 9 は、親和性付与成分を含む例 1 及び例 2 0 と同等の重量平均繊維長を示しているもの、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値は極めて低い水準を示している。これは、例 1 及び例 2 0 では、親和性付与成分の酸変性部分がガラス長繊維表面のカップリング剤と化学結合すると共に、ポリプロピレン部分がマトリックスポリマーであるホモポリプロピレンに拡散して、ガラス長繊維とマトリックスポリマーとの間に強固な結合を形成するのに対し、例 1 9 ではかかる結合が形成されず、曲げ変形や衝撃が加えられた際にマトリックスポリマーとガラス長繊維表面との界面で剥離が生じるためであると考えられる。

#### 【0 1 2 6】

これらの例の比較によれば、親和性付与成分を含む例 1 及び例 2 0 において、重量平均繊維長が 4 mm 以上、曲げ弾性率が 5 G P a 以上及びアイゾット衝撃値が  $25 \text{ K J} / \text{m}^2$  以上の射出成形品が得られることとなる。

＜親和性付与成分である酸変性ポリプロピレンの含有量の影響について＞

図 7 は、アクリル酸変性ポリプロピレンのマスターバッチにおける含有量と、重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値との関係を例 1、例 1 9、例 2 1 及び例 2 2 の試験結果に基づいて示したものである。また、図 8 は、無水マレイン酸変性ポリプロピレンのマスターバッチにおける含有量と、重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値との関係を例 1 9、例 2 0 及び例 2 3 ～ 2 5 の試験結果に基づいて示したものである。また、図 8 には、例 2 8 及び例 2 9 の試験結果をも示している。

#### 【0 1 2 7】

図 7 (a) 及び図 8 (a) によれば、重量平均繊維長は、酸変性ポリプロピレンの混合量によらず、ほぼ 4 mm 強の水準で推移している。

#### 【0 1 2 8】

図 7 (b) 及び (c) によれば、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値は、アクリル酸変性ポリプロピレンの含有量が 5 % まではその増大に伴う向上効果が確認できるものの、5 % 以上含有させるようにしてもそれらのさらなる向上効果はみられない。これと同様、図 8 (b) 及び (c) に示すように、無水マレイン酸変性ポリプロピレンの場合、それを 10 % 以上含有させるようにしても曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値のさらなる向上効果はみられない。

【 0 1 2 9 】

例 2 8 と例 2 9 とは共にアイソタクチックペンタッド分率が 9 5 % であるホモポリプロピレンをマトリックスポリマーとし、親和性付与成分としての無水マレイン酸変性ポリプロピレンの含有量のみを異にするものであるが、図 8 に示すように、上記と同様の傾向が伺われる。すなわち、重量平均繊維長及びアイゾット衝撃値については、同じ無水マレイン酸変性ポリプロピレンの含有量を有する例 2 0 及び例 2 4 とほぼ同じ水準であり、曲げ弾性率については、例 2 0 及び例 2 4 よりは高い水準であるが、無水マレイン酸変性ポリプロピレンの含有量の多少によらずほぼ同水準を示している。

＜エチレン・プロピレンブロック共重合体をマトリックスポリマーとする、又はエチレンプロピレンブロック共重合体を希釈材とすることによる影響について＞

図 5 において、マトリックスポリマーを、アイソタクチックペンタッド分率が 9 4 . 5 % であるホモポリプロピレンとする例 1 2 ～ 1 8 と、アイソタクチックペンタッド分率が 9 4 . 5 % であるエチレン・プロピレンブロック共重合体とする例 3 5 ～ 4 1 とを比較すると、各対応する M F R に対して重量平均繊維長及び曲げ弾性率は共に近い値を示しているのに対し、アイゾット衝撃値は後者の方が  $3 \sim 9 \text{ K J / m}^2$  高くなっており、その水準はアイソタクチックペンタッド分率が 9 8 % であるホモポリプロピレンをマトリックスポリマーとする例 5 ～ 1 1 と同等又はそれ以上である。これは、後者では、マトリックスポリマーであるエチレン・プロピレンブロック共重合体が、ポリプロピレン成分中にポリエチレン成分のドメインが形成された海-島構造となっているため、加えられる衝撃がポリプロピレン成分とポリエチレン成分の境界部分でエネルギー吸収されるためであると考えられる。

## 【 0 1 3 0 】

次に、ホモポリプロピレンをマスターバッチのマトリックスポリマーとし、エチレン・プロピレン共重合体を希釈材として使用した場合について考察する。

## 【 0 1 3 1 】

図 9 は、例 1 と例 3 3 及び例 2 0 と例 3 4 の試験結果に基づいて、それらの重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値を比較したものである。ここで、例 1 と例 3 3 とはマスターバッチに混合される希釈材種がそれぞれ異なり、例 1 はエチレン・プロピレン共重合体を使用され、例 3 3 はホモポリプロピレンが使用されたものである。例 2 0 及び例 3 4 の構成の相異も同様である。

## 【 0 1 3 2 】

図 9 によれば、重量平均繊維長及び曲げ弾性率は、エチレン・プロピレン共重合体を希釈材とした例 1 の方が、ホモポリプロピレンを希釈材とした例 3 3 よりも若干高い値を示している。この点は例 2 0 と例 3 4 との比較においても同じである。アイゾット衝撃値は、例 1 の方が例 3 3 よりも若干高くなっているものの、例 2 0 は逆に例 3 4 よりも低くなっており、図 5 に示されるようなエチレン・プロピレン共重合体の耐衝撃性向上効果は確認できない。この点は、希釈材におけるポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率の相異に起因するものではないかと推測される。

＜希釈材であるエチレン・プロピレンブロック共重合体におけるポリプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率の影響について＞

図 1 0 は、希釈材であるエチレン・プロピレン共重合体のプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率と、重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値との各関係を例 1、例 2 6 及び例 2 7 についての試験結果に基づいて示したものである。

## 【 0 1 3 3 】

同図によれば、希釈材であるエチレン・プロピレン共重合体のプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が高くなるに従って、重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値のいずれもが向上する傾向が伺われる。すなわち、プロピレン成分を含む希釈材でマスターバッチを希釈する場合においても、その

アイソタクチックペンタッド分率が成形品の特性に大きな影響を及ぼすということが確認された。

【0134】

ここで、各特性がアイソタクチックペンタッド分率が大きくなるに従って向上傾向を示す理由については、ホモポリプロピレンをマトリックスポリマーとしてアイソタクチックペンタッド分率を変量した場合と同様であると考えられる。

【0135】

これらの例の比較によれば、アイソタクチックペンタッド分率が95%である例1及び96%である例26において、重量平均繊維長が4mm以上、曲げ弾性率が5GPa以上及びアイゾット衝撃値が30KJ/m<sup>2</sup>以上の射出成形品が得られることとなる。

【0136】

【実施例2】

ガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料に含有されるガラス長繊維の質量百分率と、その射出成形品の曲げ特性及びアイゾット衝撃値との関係について調べた。

(試験評価サンプル)

アイソタクチックペンタッド分率が98%で、MFRが120g/10min(重量平均分子量 Mw=101200)であるホモポリプロピレンと、アクリル酸変性ポリプロピレンとの溶融物にガラス繊維束を浸漬した後に固化させ、これを長手方向に平均長さ10mmに切断してなるペレット状のマスターバッチを準備した。このマスターバッチは、ホモポリプロピレン25%、アクリル酸変性ポリプロピレン5%及びガラス長繊維70%の各重量百分率で構成されているものであった。

【0137】

そして、このマスターバッチを、プロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率が96%であるペレット状のホモポリプロピレンで適宜希釈し、ガラス長繊維の全体質量に対する質量百分率が10, 20, 30, 40及び50%となるガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料をそれぞれ調整した。また、比較材

料として、マスターバッチを構成するホモポリプロピレンのみからなるペレットをも準備した。

（試験評価方法）

調整した各ガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料及び比較材料により板状の試験片を射出成形した。次いで、この試験片を用い、J I S K 7 1 7 1 (A S T M D 7 9 0) に準じて曲げ試験を実施した。そして、得られた試験チャートから曲げ弾性率及び曲げ強度を求めた。

【 0 1 3 8 】

また、上記実施例 1 と同様にして、各ガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂材料及び比較材料のアイゾット衝撃値を J I S K 7 1 1 0 (A S T M D 2 5 6) に準じて測定した。

（試験評価結果）

＜曲げ弾性率について＞

ガラス長繊維の質量百分率と曲げ弾性率との関係を図 1 1 (a) に示す。図 1 1 (a) より明らかなように、ガラス長繊維含有量が多くなると、それに比例するように曲げ弾性率も高くなっている。これは、ガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂成形品の曲げ弾性率がガラス長繊維の含有量に依存するというものを裏付ける結果となっている。具体的には、ガラス長繊維の含有量が 3 0 % 以上で 5 G P a 以上の曲げ弾性率が発現されている。

＜曲げ強度について＞

ガラス長繊維の質量百分率と曲げ強度との関係を図 1 1 (b) に示す。図 1 1 (b) より明らかなように、ガラス長繊維含有量が大きくなるに従って曲げ強度も高くなっている。これは、曲げ弾性率の結果に準ずるものであると考えられる。

＜アイゾット衝撃値について＞

ガラス長繊維の質量百分率とアイゾット衝撃値との関係を図 1 1 (c) に示す。図 1 1 (c) より明らかなように、ガラス長繊維含有量が多くなるに従ってアイゾット衝撃値も高くなっている。注目されるのは、ガラス長繊維の質量百分率が 3 0 % 及び 4 0 % においてアイゾット衝撃値が  $2.5 \text{ KJ/m}^2$  以上の水準とな

っている点にあり、これは同等のガラス繊維の質量百分率を有する従来の射出成形品では実現することができなかった水準である。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

ペレットのマトリックスポリマー中でのガラス長繊維の分散状態を示す説明図である。

【図 2】

エチレン・プロピレンブロック共重合体の構造を示す説明図である。

【図 3】

射出成形されたシュラウドモジュールの斜視図である。

【図 4】

マトリックスポリマーであるホモポリプロピレンのアイソタクチックペンタッド分率と、射出成形品の重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値との各関係を示すグラフ図である。

【図 5】

マトリックスポリマーのMFRと、射出成形品の重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値との各関係を示すグラフ図である。

【図 6】

親和性付与成分の有無による射出成形品の重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値の各特性を比較したグラフ図である。

【図 7】

アクリル酸変性ポリプロピレンの含有量と、射出成形品の重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値との各関係を示すグラフ図である。

【図 8】

無水マレイン酸変性ポリプロピレンの含有量と、射出成形品の重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値との各関係を示すグラフ図である。

【図 9】

マスターバッチに混合する希釈材をホモポリプロピレンとしたものと、エチレン・プロピレンブロック共重合体としたものについて射出成形品の重量平均繊維

維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値の各特性を比較したグラフ図である。

【図 1 0】

希釈材であるエチレン・プロピレン共重合体のプロピレン成分のアイソタクチックペンタッド分率と、射出成形品の重量平均繊維長、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値との各関係を示すグラフ図である。

【図 1 1】

ガラス長繊維の質量百分率と、射出成形品の曲げ特性及びアイゾット衝撃値との各関係を示すグラフ図である。

【図 1 2】

従来の射出成形品及びプレス成形品のアイゾット衝撃値と曲げ弾性率との関係を示すグラフ図である。

【図 1 3】

射出成形機内におけるマトリックスポリマー及びガラス長繊維の状態を示す説明図である。

【図 1 4】

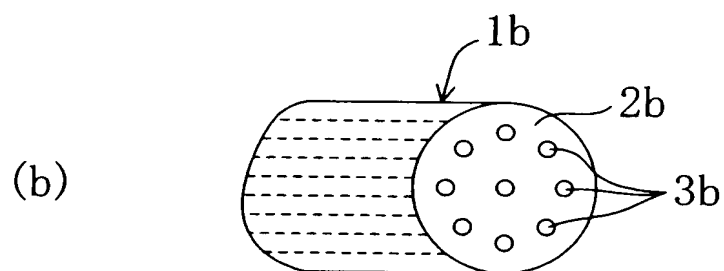
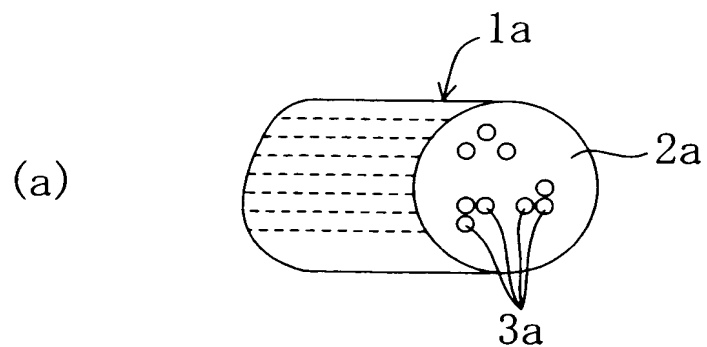
ガラス長繊維の分散性改良及びエラストマー添加による衝撃強度向上を図ったガラス長繊維強化ポリプロピレン樹脂のアイゾット衝撃値と曲げ弾性率との関係を示すグラフ図である。

【符号の説明】

- 1 a, 1 b   ペレット
- 2 a, 2 b   マトリックスポリマー
- 3 a, 3 b   ガラス長繊維
- 4           ポリプロピレン成分
- 5           ポリエチレン成分
- 6           シュラウドモジュール
- 7           固相
- 8           溶融相

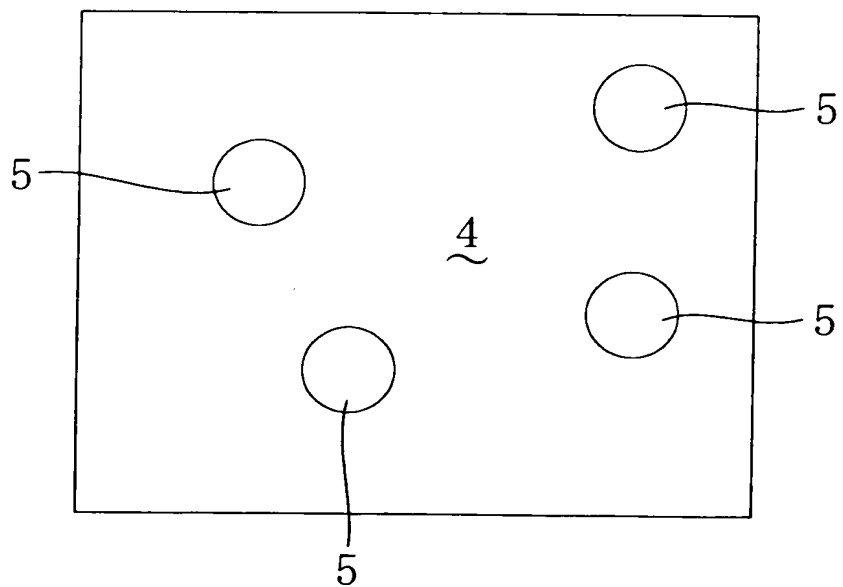
【書類名】 図面

【図 1】

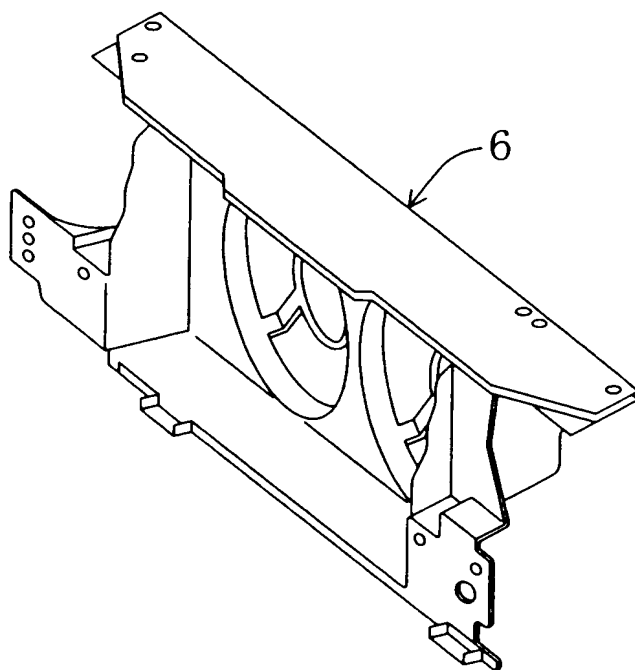




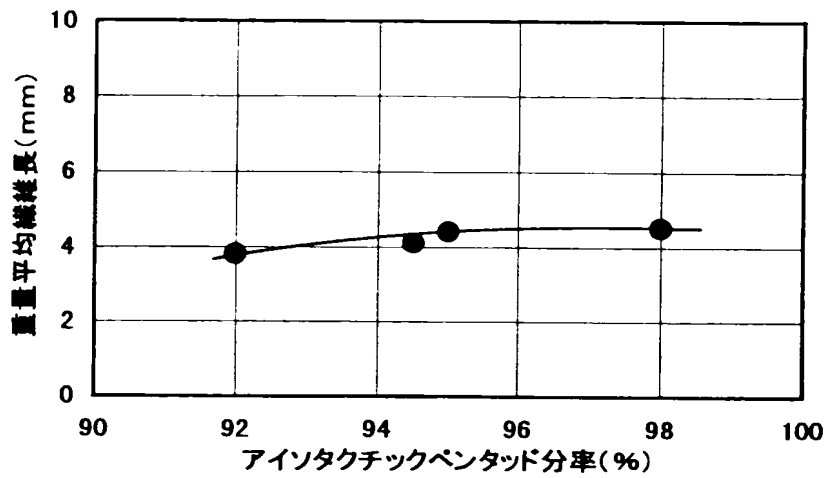
【図 2】



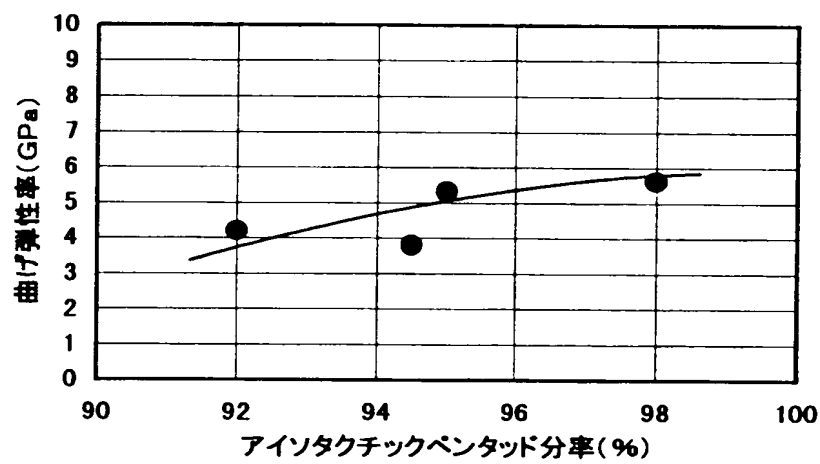
【図 3】



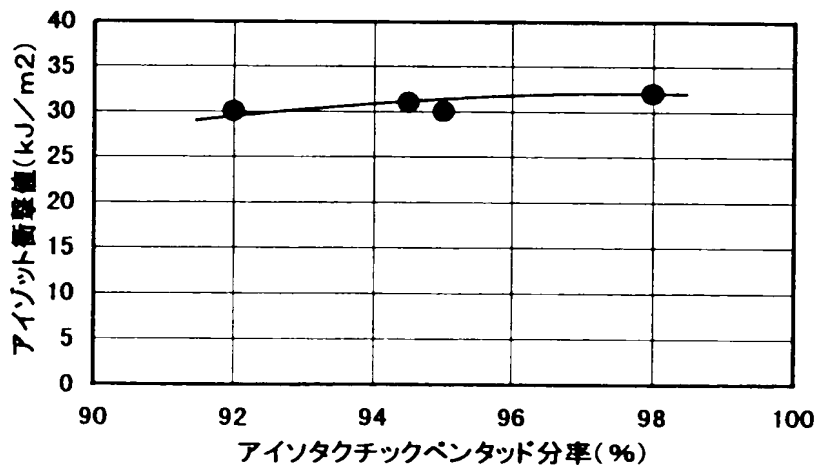
【図 4】



( a )

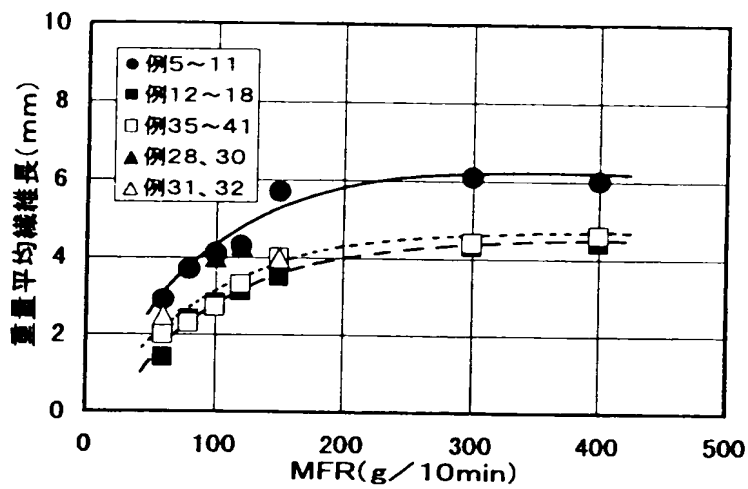


( b )

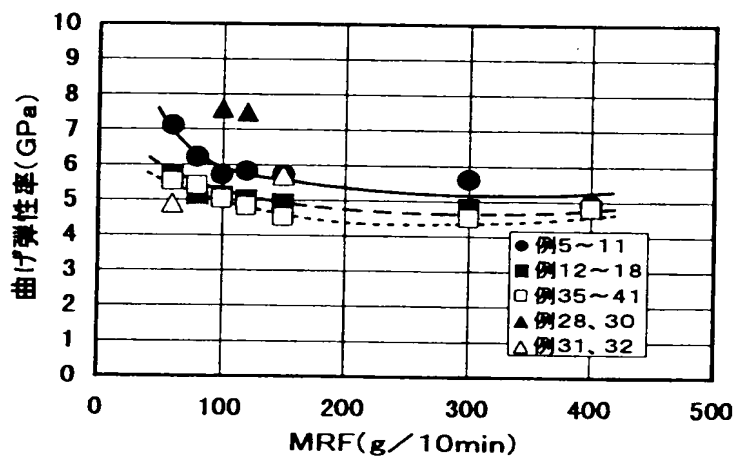


( c )

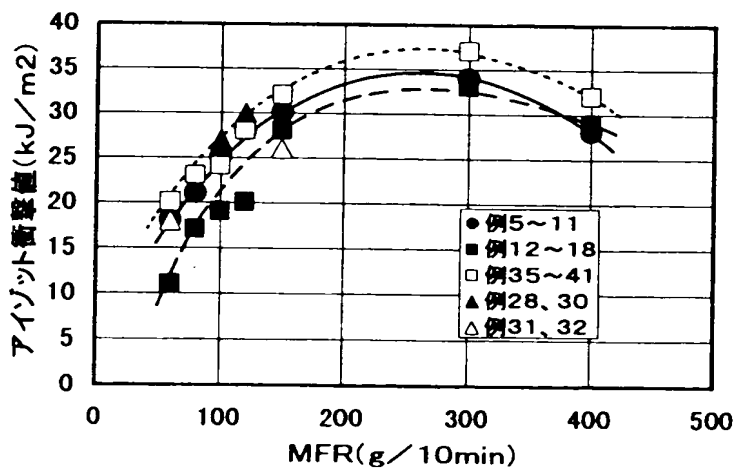
【図 5】



( a )

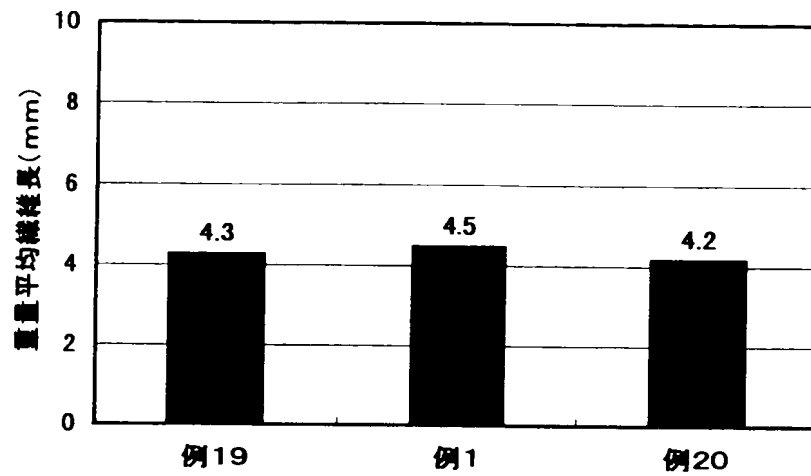


( b )

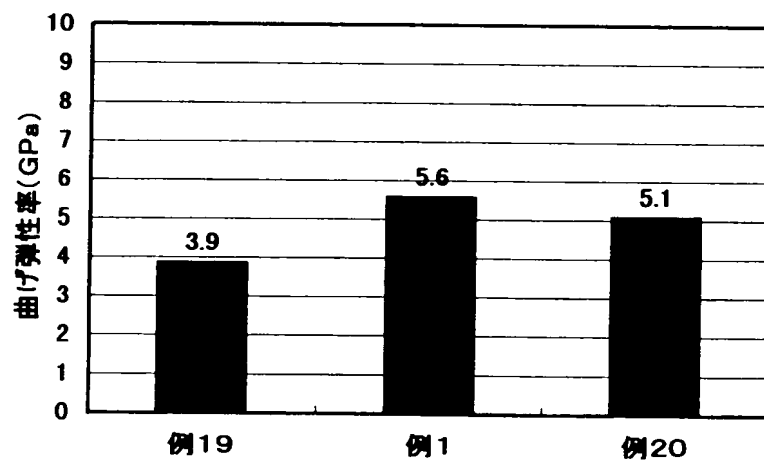


( c )

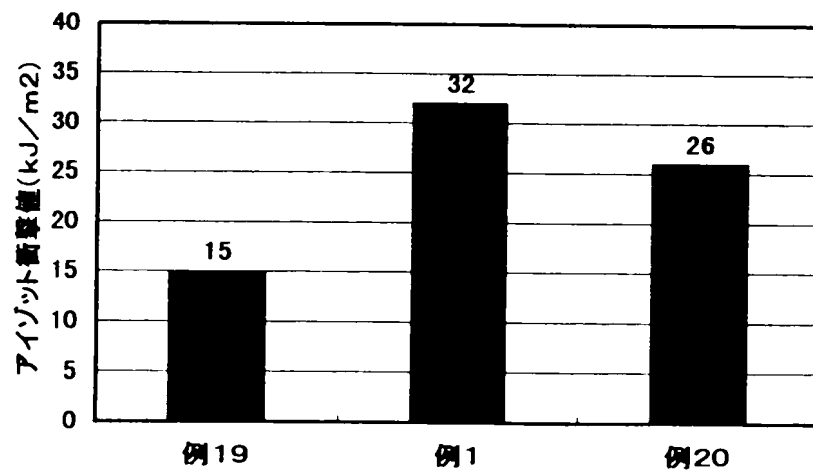
【図 6】



( a )

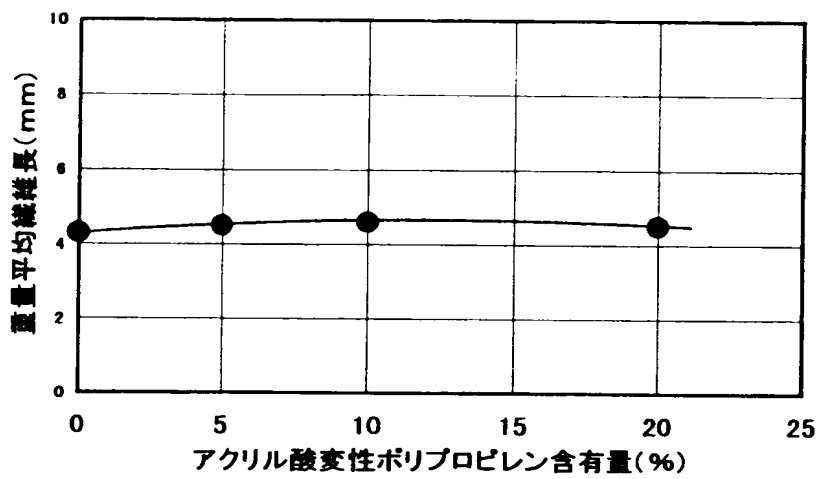


( b )

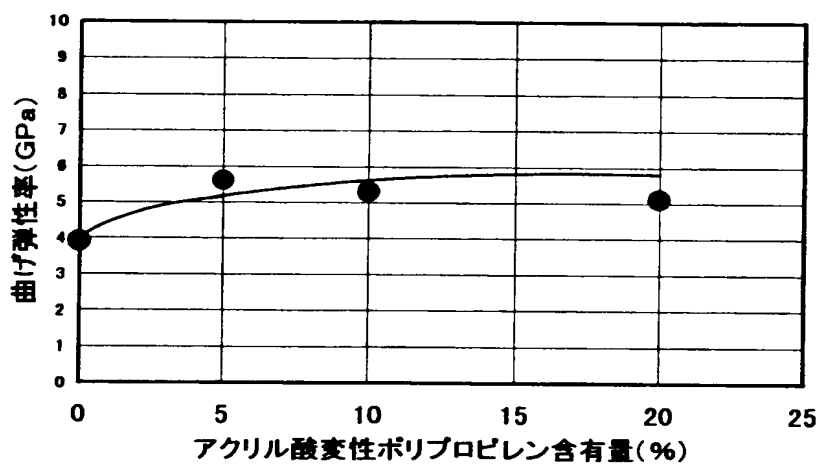


( c )

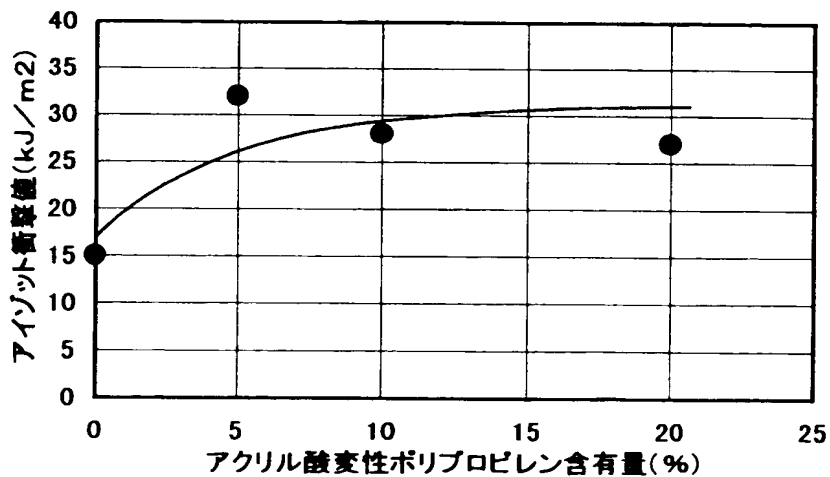
【図 7】



( a )

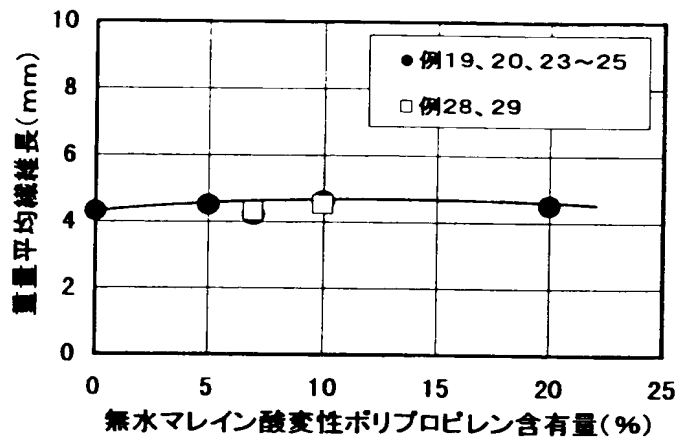


( b )

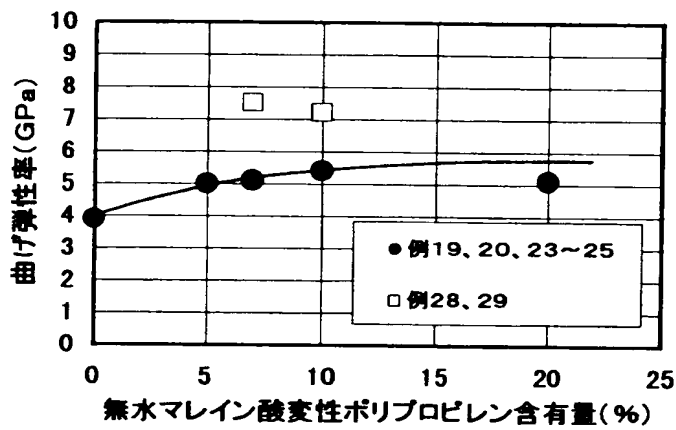


( c )

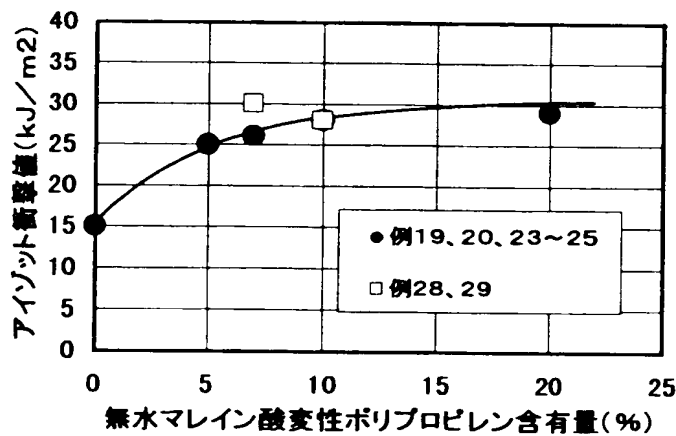
【図 8】



( a )

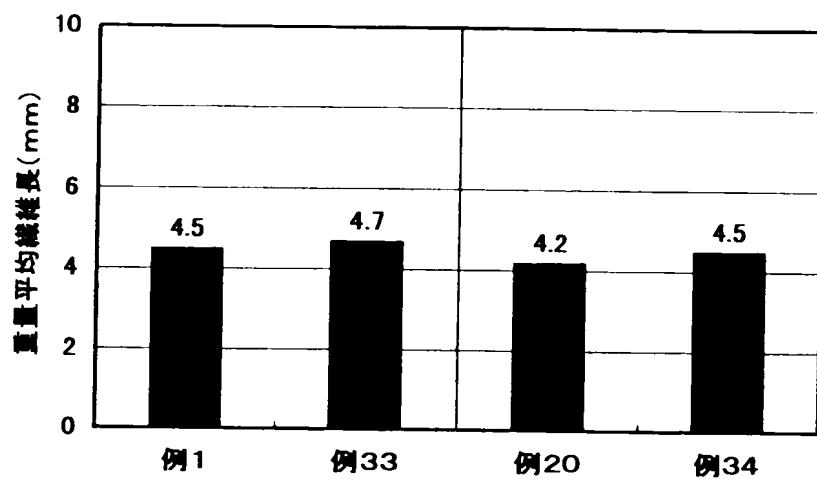


( b )

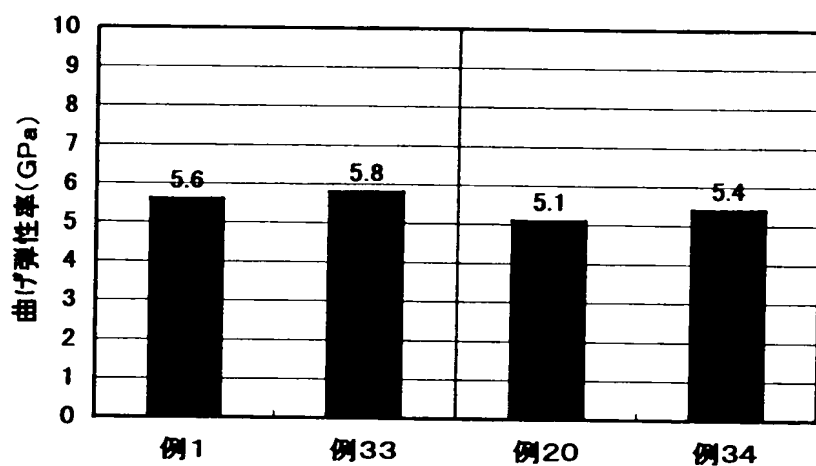


( c )

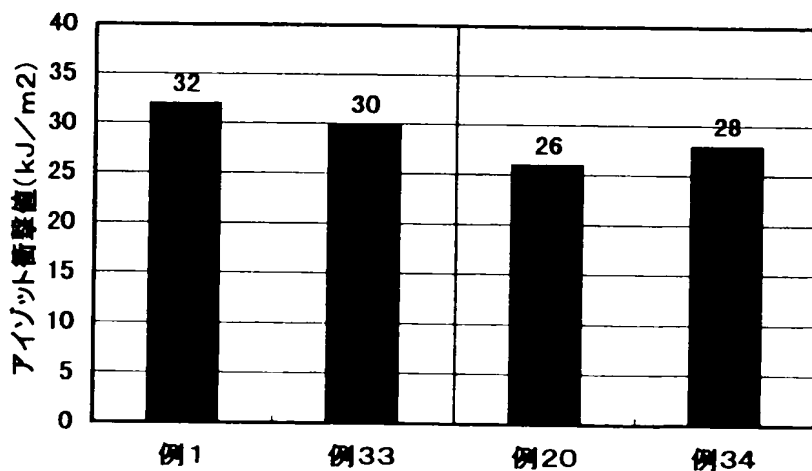
【図 9】



( a )

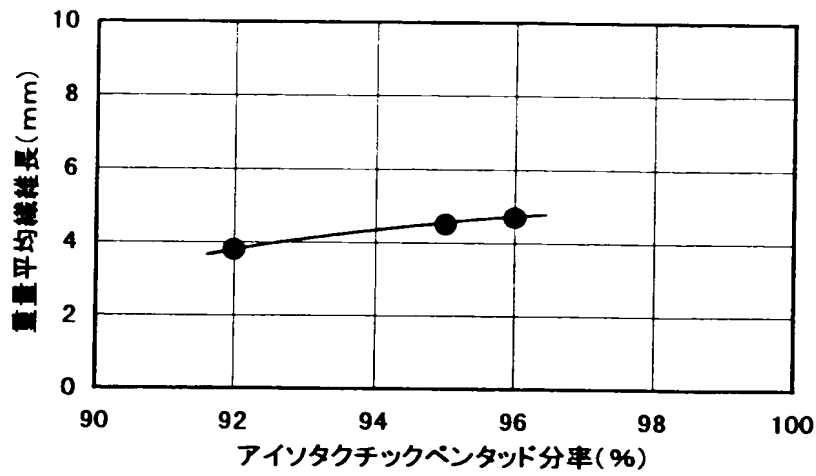


( b )

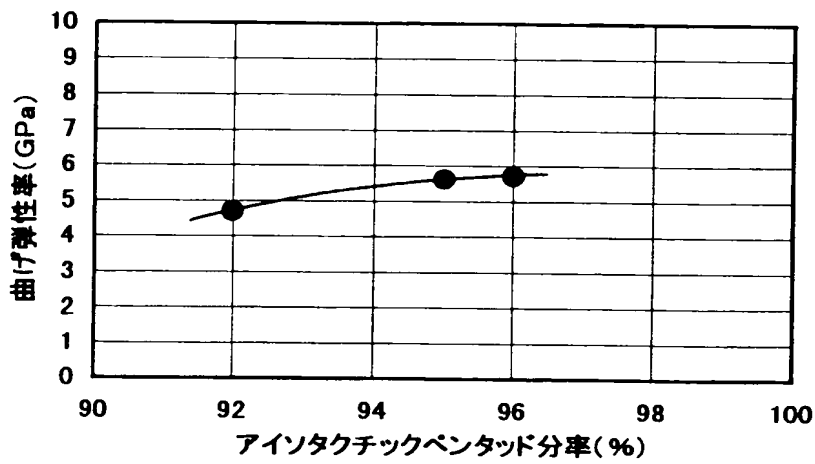


( c )

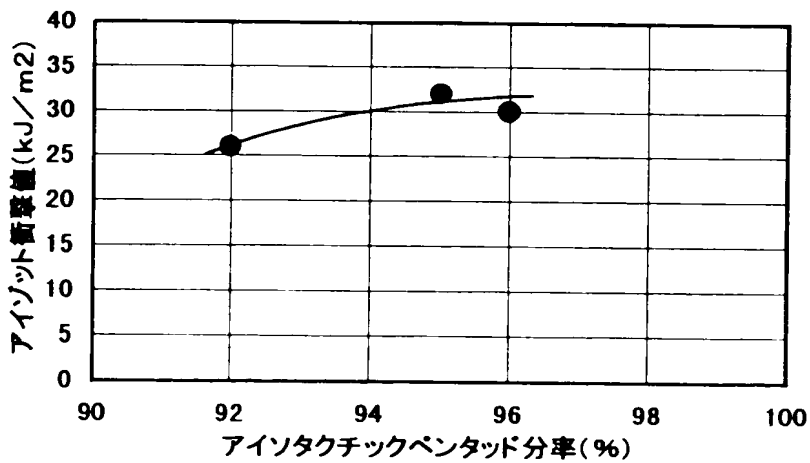
【図 1 0】



( a )



( b )

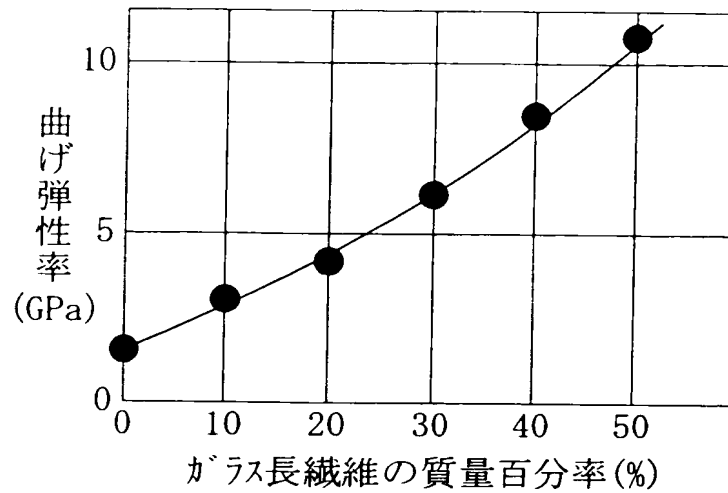


( c )

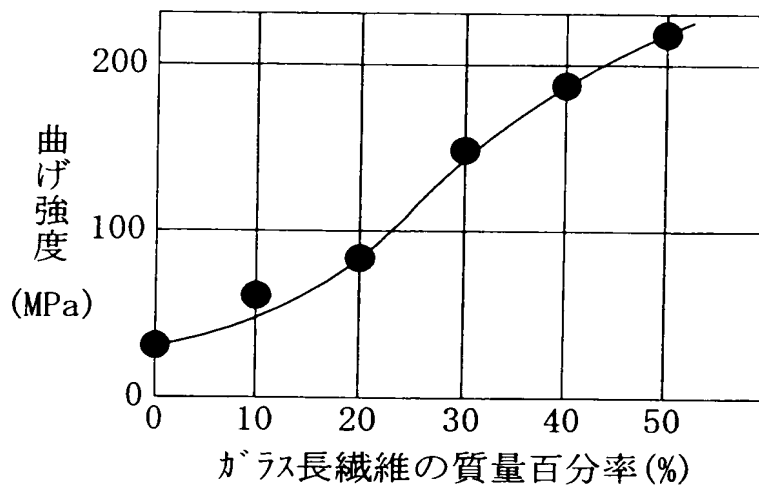


【図 1 1】

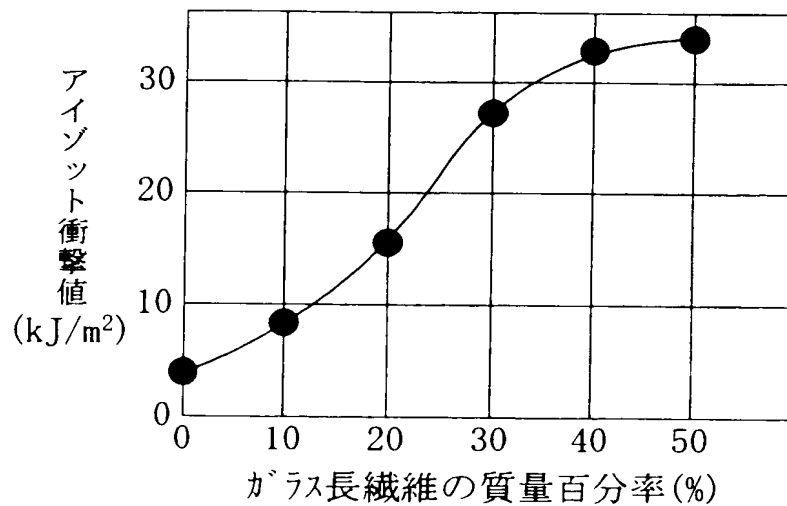
(a)



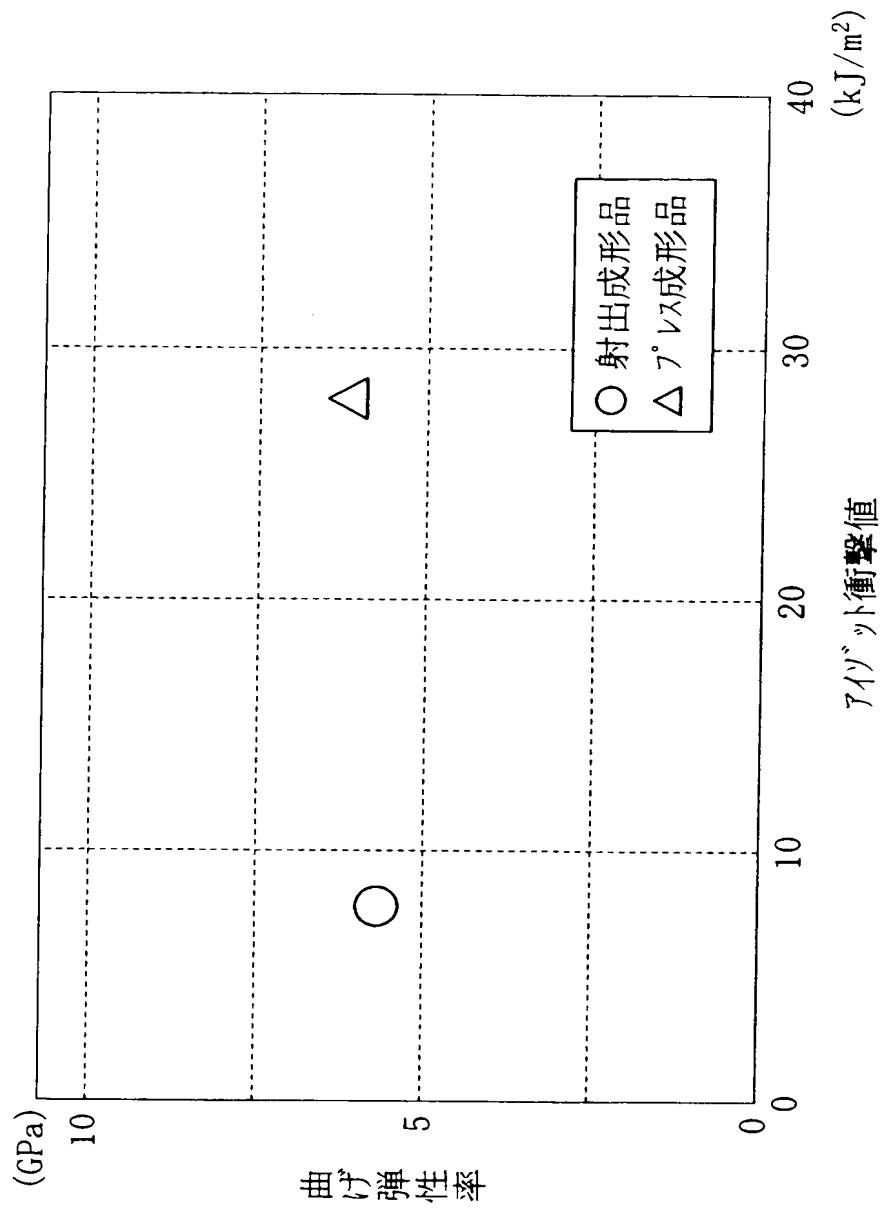
(b)



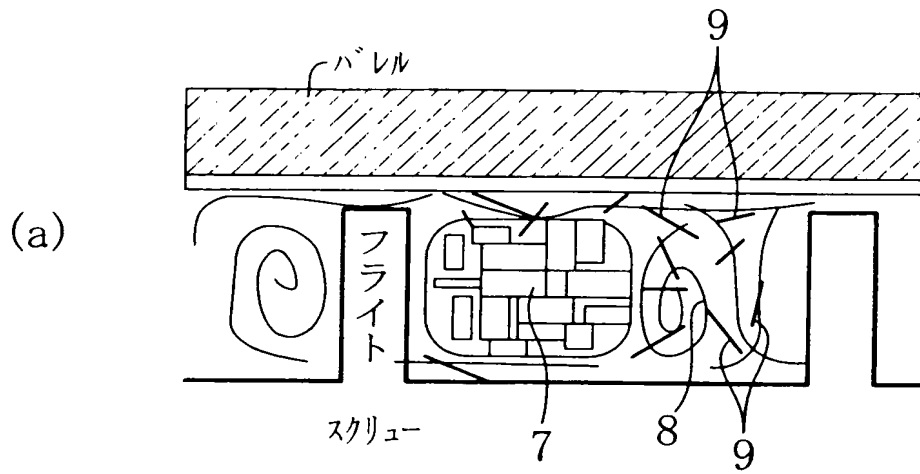
(c)



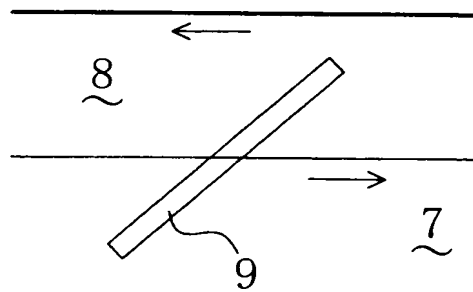
【図 12】



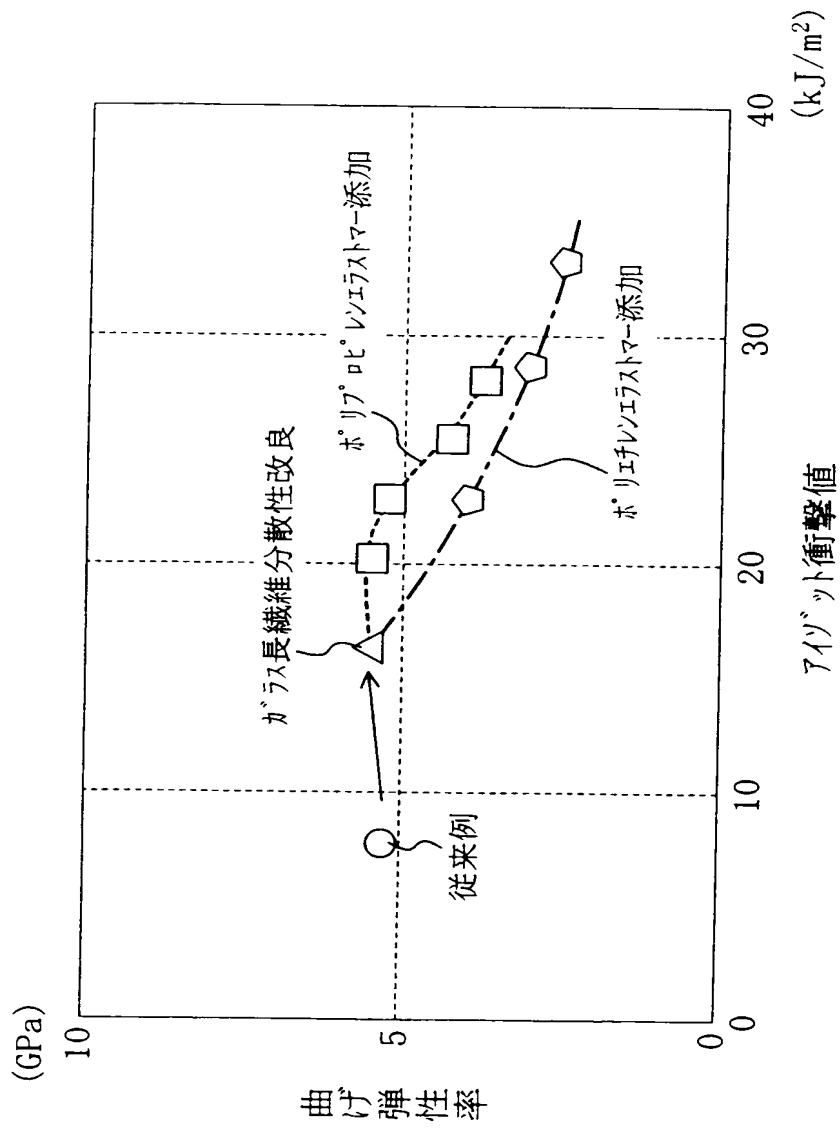
【図 1 3】



(b)



【図 14】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 成形加工時におけるガラス長繊維の折損を抑制でき、高い曲げ弾性率と高い衝撃強度とを備えた成形品を成形することができる成形用ガラス長繊維強化樹脂材料を得る。

【解決手段】 マトリックスポリマーとガラス長繊維との複合体を備えた成形用ガラス長繊維強化樹脂材料において、マトリックスポリマーを、アイソタクチックペンタッド分率が95%以上であるポリプロピレン成分を有し且つメルトフローレートが100～300g/10minであるものとし、ガラス長繊維を全体質量に対して質量百分率で30～50%含まれるようにする。

【選択図】 なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 {000003137}

1. 変更年月日	1990年 8月22日
[変更理由]	新規登録
住 所	広島県安芸郡府中町新地3番1号
氏 名	マツダ株式会社